

UNIVERSITÉ PARIS-NORD

LABORATOIRE DE PHYSIQUE DES LASERS

THÈSE

*présentée à l'Université Paris XIII*

*par*

CHRISTOPHE SALOMON

pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences Physiques

Sujet de la Thèse : FRANGES DE RAMSEY ET SPECTROSCOPIE LASER A ULTRA-HAUTE  
RESOLUTION DANS L'INFRAROUGE.

Soutenue le 18 Octobre 1984 devant la Commission d'Examen

MM. C. COHEN-TANNOUDJI      Président

J. BAUDON

B. MACKE

J. MORET-BAILLY

S. LIBERMAN

Ch. BORDE

} Examineurs

UNIVERSITÉ PARIS-NORD

LABORATOIRE DE PHYSIQUE DES LASERS

THÈSE

*présentée à l'Université Paris XIII*

*par*

CHRISTOPHE SALOMON

pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences Physiques

Sujet de la Thèse : FRANGES DE RAMSEY ET SPECTROSCOPIE LASER A ULTRA-HAUTE  
RESOLUTION DANS L'INFRAROUGE.

Soutenue le 18 Octobre 1984 devant la Commission d'Examen

MM. C. COHEN-TANNOUDJI      Président

J. BAUDON

B. MACKE

J. MORET-BAILLY

S. LIBERMAN

Ch. BORDE

} Examineurs

*A ma femme, Carole*

*La Nature est un temple où de vivants piliers  
Laissent parfois sortir de confuses paroles ;  
L'homme y passe à travers des forêts de symboles  
Qui l'observent avec des regards familiers.*

.....

*Ch. BAUDELAIRE (Correspondances)*

Ce travail a été effectué au Laboratoire de Physique des Lasers durant les années 1980-1984.

Je remercie vivement son fondateur Bernard DECOMPS de m'avoir accueilli dans son groupe de recherche, et ses directeurs successifs, Christian BORDE et Martial DUCLOY pour les très bonnes conditions de travail qu'ils ont su y créer sur le plan scientifique et matériel.

Ma reconnaissance va tout spécialement à Christian BORDE, qui a proposé et dirigé ces recherches avec la plus haute compétence. Ces travaux doivent beaucoup à son enthousiasme et à son engagement personnel. Je suis heureux de pouvoir lui exprimer ici toute la joie que j'ai eue de travailler dans son équipe et ma profonde gratitude.

Je remercie vivement Monsieur le Professeur C. COHEN-TANNOUDJI de l'intérêt qu'il a porté à ce travail en ayant très aimablement accepté la charge de présider le Jury.

Je suis très reconnaissant envers Messieurs les Professeurs J. BAUDON, B. MACKE et J. MORET-BAILLY ainsi qu'à S. LIBERMAN d'avoir accepté de se joindre au Jury, de lire ce mémoire, et de formuler des remarques sur ce travail.

De nombreux résultats de cette thèse sont le fruit d'un travail d'équipe efficace et amical. Je suis heureux de pouvoir remercier en cette occasion Messieurs Alain Van LERBERGHE, Christian CHARDONNET et Christian BREANT pour leur gentillesse et leur compétence. Qu'il me soit permis en particulier, de remercier chaleureusement Christian BREANT pour l'efficacité de sa collaboration quotidienne au cours des trois années où nous avons travaillé ensemble.

J'ai également été très heureux de travailler en collaboration avec Sigrid AVRILLIER, Dick BARGER, Georges CAMY, Jacques BORDE et André CLAIRON à diverses étapes du déroulement de cette étude. Je tiens à les en remercier vivement.

Qu'il me soit permis de remercier C. PICART pour la réalisation de la plupart des éléments optiques présentés dans ce mémoire, O. LOPEZ pour les montages électroniques, ainsi que l'équipe des mécaniciens pour le travail considérable qu'ils ont effectué.



Enfin, que tous les membres du laboratoire soient aussi très sincèrement remerciés pour leur efficace et sympathique concours.

J'adresse mes remerciements à Madame D. SELETTI qui a, une fois de plus, assuré la frappe de cette thèse avec grand soin et rapidité.

Je remercie également Madame MARCHANT et le service de reprographie de l'Université pour l'impression de ce mémoire.

FRANGES DE RAMSEY ET SPECTROSCOPIE LASER A ULTRA-HAUTE  
RESOLUTION DANS L'INFRAROUGE

## RÉSUMÉ

La méthode des franges de Ramsey dans le domaine optique, nouvelle technique de spectroscopie laser sub-Doppler, est décrite en détail, à la fois théoriquement et expérimentalement. Nous proposons en particulier une nouvelle géométrie d'interaction pour les franges, qui comporte quatre ondes progressives au lieu des trois ondes stationnaires employées jusqu'à présent. Une description théorique simple permet de comparer les deux méthodes et de souligner les différences avec les échos de photons stimulés.

Sur un plan expérimental, sont exposés les derniers développements du spectromètre de saturation à ultra-haute résolution fonctionnant dans la région spectrale de 9 à 11 microns, qui ont été réalisés en vue d'observer ces franges de Ramsey en cuve et sur un jet moléculaire : éléments optiques de grandes dimensions et de haute planéité, stabilisation en fréquence de lasers à  $\text{CO}_2$  conventionnels ou guides d'ondes au niveau de la dizaine de Hertz, verrouillage en phase de deux lasers, pilotage de l'expérience par ordinateur, et pouvoir de résolution de l'ordre de  $5 \times 10^{10}$ . Diverses applications de ces recherches, en particulier à la spectroscopie des structures fines, superfines et superhyperfines des toupies sphériques sont évoquées. Enfin, les signaux de franges de Ramsey obtenus sur un jet supersonique de  $\text{SF}_6$ , illustrent le potentiel de la technique des franges de Ramsey pour la spectroscopie à ultra-haute résolution et les étalons optiques de fréquence.

TABLE DES MATIERES

	<u>Page</u>
<u>INTRODUCTION</u>	1
<u>CHAPITRE 1 : THEORIE DES FRANGES DE RAMSEY EN ONDES PROGRESSIVES OU STATIONNAIRES DANS LE DOMAINE OPTIQUE</u>	7
1.1 - <u>INTRODUCTION</u>	8
1.2 - <u>LES ETATS D'ENERGIE-IMPULSION</u>	13
1.2.1 - CAS DES ONDES PLANES	13
1.2.2 - DEUX DESCRIPTIONS POSSIBLES	13
1.2.3 - L'EQUATION DE SCHRODINGER	16
1.2.4 - TRANSFORMATION UNITAIRE; CHANGEMENT DE REFERENTIEL	17
1.3 - <u>CAS DES ONDES PROGRESSIVES SEPARÉES SPATIALEMENT</u>	19
1.3.1 - EQUATION D'EVOLUTION	19
1.3.2 - INTRODUCTION DU SPIN FICTIF	21
1.3.3 (a) - CAS D'UNE ONDE PROGRESSIVE UNIQUE	22
1.3.3 (b) - CAS DE DEUX ONDES PROGRESSIVES DE MEME SENS : FRANGES DE RAMSEY A DEUX ZONES	24
1.3.4 - CAS DE DEUX PAIRES D'ONDES PROGRESSIVES DE DIRECTIONS OPPOSEES	31
1.3.4.1 - Formule générale pour les franges de Ramsey dans le domaine optique	31
1.3.4.2 - Discussion	33
1.3.4.3 - Représentation géométrique des franges de Ramsey à l'aide de spins fictifs	38
1.4 - <u>CAS D'UNE (ou PLUSIEURS) ONDES STATIONNAIRES</u>	41
1.4.1 - CAS D'UNE ONDE STATIONNAIRE	41
1.4.1.1 - Calcul de l'intégrale (1.36)	44
1.4.1.2 - Oscillations de Rabi en ondes stationnaires	46

	<u>Page</u>
1.4.2 - CAS DE DEUX ONDES STATIONNAIRES : FRANGES DE RAMSEY A DEUX ZONES	47
1.4.3 - CAS DE TROIS ONDES STATIONNAIRES	49
1.4.4 - COMPARAISON ENTRE LA GEOMETRIE DES QUATRE ONDES PROGRESSIVES ET LA GEOMETRIE DES TROIS ONDES STATIONNAIRES	52
1.5 - <u>CAS MIXTE : UNE ONDE STATIONNAIRE ENCADREE PAR DEUX ONDES PROGRESSIVES DE DIRECTIONS OPPOSEES</u>	54
1.6 - <u>DIAGRAMMES DE MATRICE DENSITE EN CHAMP FORT</u>	58
1.6.1 - PRINCIPE	58
1.6.2 - COMPARAISON DES FRANGES DE RAMSEY EN ONDES PROGRESSIVES AVEC LES ECHOS DE PHOTONS	60
1.6.2.1 - Les diagrammes des signaux de franges de Ramsey	60
1.6.2.2 - Les diagrammes de l'écho de photons usuel	63
1.6.2.3 - Comparaison	65
1.6.3 - DIAGRAMMES EN ONDES STATIONNAIRES	67
1.6.3.1 - Calcul de la matrice de transfert	67
1.6.3.2 - Les diagrammes en franges de Ramsey avec trois ondes stationnaires et l'effet de recul	69
1.6.4 - D'AUTRES DIAGRAMMES	76
1.6.4.1 - Cas mixte : une onde stationnaire encadrée par deux ondes progressives de sens opposés	76
1.6.4.2 - Echo de photons induit vers l'arrière par une onde stationnaire	76
<u>CHAPITRE 2 : LE SPECTROMETRE DE SATURATION</u>	78
2.1 - <u>INTRODUCTION</u>	79
2.1.1 - PRESENTATION GENERALE DU SPECTROMETRE	79
2.1.2 - LES DIFFERENTS MODES D'UTILISATION DU SPECTROMETRE	82
2.2 - <u>DESCRIPTION DES SOURCES LASERS</u>	84

	<u>Page</u>
2.2.1 - LES LASERS CONVENTIONNELS L1 ET L2	84
2.2.2 - LES LASERS GUIDES D'ONDES LG01 ET LG02	88
2.2.3 - STABILITE DES LASERS LIBRES(CONVENTIONNELS OU GUIDES D'ONDES)	90
2.2.3.1 - Les lasers à $\text{CO}_2$	90
2.2.3.2 - Les lasers à $\text{N}_2\text{O}$	92
2.3 - <u>STABILISATION EN FREQUENCE D'UN LASER A <math>\text{CO}_2</math> (OU <math>\text{N}_2\text{O}</math>)</u>	95
2.3.1 - PRESENTATION GENERALE	95
2.3.2 - MONTAGE OPTIQUE DE LA BOUCLE DE REFERENCE	97
2.3.2.1 - Caractéristiques du faisceau laser L2	97
2.3.2.2 - La cuve d'absorption de référence	98
2.3.2.3 - Détection des signaux optiques	100
2.3.3 - OBTENTION DU SIGNAL DE CORRECTION	103
2.3.4 - LE MONTAGE ELECTRONIQUE	103
2.3.4.1 - Description générale	103
2.3.4.1.1 - Elaboration du signal d'erreur	105
2.3.4.1.2 - Amplification et correction	105
2.3.4.1.3 - Contrôle de la fréquence du laser	107
2.3.4.1.4 - Discussion	107
2.3.4.2 - Les différentes sources de bruit	109
2.3.4.2.1 - Généralités	109
2.3.4.2.2 - Bruit propre du détecteur	110
2.3.4.2.3 - Bruit de photons	113
2.3.4.2.4 - Bruit d'amplitude du laser	114
2.3.4.2.5 - Bruit du préamplificateur	115
2.3.4.2.6 - Bruit de détection synchrone	118
2.3.4.2.7 - Bruit de l'amplificateur haute-tension	119
2.3.4.2.8 - Discussion	119
2.3.4.3 - Optimisation de la fonction de transfert du système asservi	122

	<u>Page</u>
2.3.5 - PERFORMANCES DES ASSERVISSEMENTS	127
2.3.5.1 - Pureté spectrale des lasers asservis	127
2.3.5.2 - La variance d'Allan des lasers asservis	129
2.3.5.3 - Discussion	133
2.4 - <u>LA BOUCLE DE DECALAGE EN FREQUENCE PAR VERROUILLAGE EN PHASE</u>	134
2.5 - <u>LE PILOTAGE DE L'EXPERIENCE PAR ORDINATEUR</u>	145
2.6 - <u>LE MONTAGE OPTIQUE DE LA GRANDE CUVE D'ABSORPTION</u>	150
2.6.1 - L'INTERFEROMETRE DE MICHELSON MODIFIE (I.M.M.)	154
2.6.2 - LA PROCEDURE DE REGLAGE DES BLOCS OPTIQUES	159
2.6.3 - REGLAGE DE L'OPTIQUE D'ENTREE DU SPECTROMETRE	161
2.6.4 - INSERTION DES BLOCS OPTIQUES DANS LA GRANDE CUVE	165
2.6.5 - COMPENSATION DU CHAMP MAGNETIQUE TERRESTRE	166
<u>CHAPITRE 3 : LES RESULTATS EN CUVE</u>	168
3.1 - <u>LES RESONANCES DE SATURATION A TRES HAUTE RESOLUTION</u>	169
3.2 - <u>EFFET ZEEMAN DU AU CHAMP MAGNETIQUE TERRESTRE</u>	180
3.2.1 - LE SPECTRE ZEEMAN	180
3.2.2 - CALCUL DES INTENSITES RELATIVES DES COMPOSANTES ZEEMAN	186
3.3 - <u>CALCUL THEORIQUE DE L'ORDRE DE GRANDEUR DU SIGNAL DE SATURATION OU DE FRANGES DE RAMSEY</u>	192
3.3.1 - INTRODUCTION	192
3.3.2 - CALCUL DU MOMENT DE TRANSITION	196
3.3.3 - POPULATION DES NIVEAUX ET FONCTION DE PARTITION POUR LA MOLECULE SF <sub>6</sub>	200
3.4 - <u>LA TECHNIQUE DE MODULATION A HAUTE FREQUENCE</u>	206
3.4.1 - INTRODUCTION	206
3.4.2 - MODULATION DE PHASE (OU DE FREQUENCE)	208
3.4.2.1 - Champs lasers modulés en phase	208

	<u>Page</u>
3.4.2.2 - Expression générale de la forme de raie	210
3.4.2.3 - Cas où les faisceaux saturants et sondes sont modulés à la même fréquence	212
3.4.3 - MODULATION D'AMPLITUDE ASSOCIEE A UNE MODULATION DE PHASE	216
3.4.4 - RESULTATS	221
3.4.4.1 - Transition P 39 $A_2^3$ de $^{192}\text{OsO}_4$	221
3.4.4.1.1 - Champ laser faible : $P = 2 \mu\text{W}$	221
3.4.4.1.2 - Champ laser relativement intense : $P = 12 \mu\text{W}$	221
3.4.4.2 - Transition Q 43 $F_1^8$ de $\text{SF}_6$	226
3.4.5 - COMPARAISON DE LA SENSIBILITE DES METHODES DE DETECTION BASSE FREQUENCE ( $\Omega < \Gamma$ ) ET HAUTE FREQUENCE ( $\Omega > \Gamma$ )	227
3.4.5.1 - Modulation basse fréquence ( $\Omega < \Gamma$ )	227
3.4.5.2 - Modulation haute fréquence ( $\Omega > \Gamma$ )	230
3.4.6 - LA DETECTIVITE ULTIME DU SPECTROMETRE DE SATURATION SOUS SA FORME ACTUELLE	234
3.4.6.1 - D'autres spectres en modulation haute fréquence	236
3.4.7 - UNE TECHNIQUE POUR AMELIORER LA SENSIBILITE EN SPEC- TROSCOPIE DE SATURATION : L'UTILISATION DE PLUSIEURS CLASSES DE VITESSES	240
3.4.7.1 - Principe	240
3.4.7.2 - Résultats	241
3.4.7.2.1 - Détection à basse fréquence ( $\Omega = 1,5 \text{ kHz}$ )	241
3.4.7.2.2 - Détection hétérodyne à haute fréquence ( $\Omega = 80 \text{ kHz}$ )	244
3.5 - <u>LES RESULTATS SPECTROSCOPIQUES</u>	247
3.5.1 - STRUCTURES FINES, SUPERFINES, HYPERFINES ET SUPERHYPER- FINES DANS LA BANDE $\nu_3$ DE $\text{SF}_6$	247
3.5.1.1 - Introduction	247
3.5.1.2 - La brisure du type de symétrie des niveaux de vibration-rotation	250
3.5.1.3 - Observation de structures superhyperfines	257



	<u>Page</u>
3.5.2 - MOLECULE $\text{OsO}_4$	266
3.5.3 - PREMIERE OBSERVATION DE LA STRUCTURE HYPERFINE MAGNETIQUE DANS LE SPECTRE INFRAROUGE DE L'AMMONIAC	269
3.6 - <u>LES RESULTATS METROLOGIQUES</u>	276
3.6.1 - INTRODUCTION	276
3.6.2 - PRINCIPE DE LA MESURE DES FREQUENCES	278
3.6.3 - RESULTATS ET DISCUSSIONS. LA GRILLE DE FREQUENCES DE REFERENCE RELIEE A L'HORLOGE A CESIUM	281
3.6.4 - CONCLUSION	285
<u>CHAPITRE 4</u> : <u>LES FRANGES DE RAMSEY SUR LE JET SUPERSONIQUE</u>	288
- <u>INTRODUCTION</u>	289
4.1 - <u>DESCRIPTION DE L'APPAREILLAGE</u>	290
4.1.1 - LE JET SUPERSONIQUE	290
4.1.2 - LE BOLOMETRE	293
4.2 - <u>RESULTATS PRELIMINAIRES AVEC DETECTION BOLOMETRIQUE</u>	295
4.2.1 - L'INTERACTION ENTRE UN FAISCEAU LASER GAUSSIEN ET UN JET MOLECULAIRE SUPERSONIQUE	295
4.2.2 - DETERMINATION DES CONDITIONS OPTIMALES POUR L'OBSERVATION DES FRANGES SUR LE JET SUPERSONIQUE	299
4.3 - <u>LES FRANGES DE RAMSEY AVEC DETECTION BOLOMETRIQUE</u>	301
4.3.1 - COMPARAISON ENTRE LES GEOMETRIES D'INTERACTION A TROIS ONDES STATIONNAIRES ET A QUATRE ONDES PROGRESSIVES	301
4.3.2 - DISCUSSION : COMPARAISON AVEC LA THEORIE EN ONDES PLANES	304
4.3.3 - COMPARAISON AVEC LA THEORIE EN FAISCEAUX GAUSSIENS	307
4.3.4 - CALCUL DE L'ORDRE DE GRANDEUR DU SIGNAL SUR LE BOLOMETRE. DISCUSSION	307

	<u>Page</u>
4.4 - <u>LES FRANGES DE RAMSEY A HAUTE RESOLUTION</u>	310
4.4.1 - LES FRANGES A HAUTE RESOLUTION AVEC DETECTION BOLO- METRIQUE	312
4.4.2 - DETECTION OPTIQUE DES FRANGES DE RAMSEY A HAUTE RESOLUTION	317
4.4.2.1 - Etude en fonction de l'intensité du laser	321
4.4.2.2 - Comparaison avec la théorie en ondes planes. Discussion	321
4.5 - COMPARAISON ENTRE LA DETECTION OPTIQUE ET LA DETECTION BOLOMETRIQUE	329
<u>CONCLUSION ET PERSPECTIVES</u>	331
1 - FRANGES DE RAMSEY ET LASERS STABLES	331
2 - SPECTROSCOPIE MOLECULAIRE A ULTRA HAUTE RESOLUTION EN CUVE	335
<u>APPENDICE A</u> - EQUATION D'EVOLUTION DES ELEMENTS DE MATRICE DENSITE ENTRE ETATS D'ENERGIE-IMPULSION	337
<u>APPENDICE B</u> - LE PROGRAMME SHAPE	341
<u>APPENDICE C</u> - RAPPELS SUR LA CARACTERISATION DE LA STABILITE DE FREQUENCE D'UN OSCILLATEUR	344
<u>APPENDICE D</u> - STRUCTURE ZEEMAN DUE AU CHAMP MAGNETIQUE TERRESTRE DES TRANSITIONS P4, R28, Q55, ET R94 DE LA BANDE $\nu_3$ DE SF <sub>6</sub>	349
<u>APPENDICE E</u> - PROGRAMME DE COMMANDE DU SPECTROMETRE DE SATURATION PAR LE MICRO-ORDINATEUR HP 9826	362
<u>REFERENCES</u>	371

## INTRODUCTION

Ce n'est que depuis une quinzaine d'années que la résolution de la spectroscopie optique en phase gazeuse n'est plus limitée aux alentours de  $10^5$ - $10^6$  par l'élargissement Doppler des raies. L'utilisation de la lumière laser comme source de rayonnement cohérent et hautement monochromatique, combinée avec des méthodes permettant de s'affranchir de la largeur Doppler a porté la limite de résolution au-dessus de  $10^{11}$ .

Parmi les nombreuses méthodes de spectroscopie sub-Doppler, deux approches complémentaires ont été proposées et seront abordées dans ce travail :

1) La spectroscopie de saturation [1-6], qui, rappelons-le, repose sur l'interaction des atomes ou des molécules avec deux ondes se propageant en sens inverse. Dans la distribution thermique des vitesses, une classe de vitesse particulière est sélectionnée : c'est la classe de vitesse dont la projection  $v_z$  sur l'axe de propagation des faisceaux lumineux est nulle. Il est clair qu'à très haute résolution, cette classe de vitesse est très étroite et fournit un signal de saturation de plus en plus faible.

2) Le contrôle d'une partie (ou de la totalité) des degrés de liberté externes de l'ensemble des atomes ou des molécules [7-9] : jet effusif, jet supersonique, et plus récemment, ralentissement par laser d'un jet d'atomes neutres jusqu'à l'arrêt [10,12]. Dans le cas d'espèces chargées (électrons ou ions), il a même été possible de piéger un ion (électron) unique dans une trappe pour des durées considérables, permettant des mesures extrêmement précises sur ces espèces [13-15].

Dans les deux méthodes, qui peuvent être utilisées simultanément, le but ultime est d'obtenir une résonance la plus étroite possible sur le système simple le plus isolé possible..

En spectroscopie de saturation, c'est en effet le temps fini d'interaction cohérente entre les atomes (ou les molécules) et la lumière laser, qui limite la résolution. Pour les systèmes à longue durée de vie, ce temps d'interaction cohérente dépend de la pureté spectrale des lasers, du diamètre et de la qualité optique des faisceaux, ainsi que de la vitesse de traversée des faisceaux. Si cette dernière devient extrêmement faible (méthode 2), la limitation due au temps de vol des molécules à travers le faisceau devient caduque.

Avec une molécule lourde telle que  $\text{OsO}_4$ , un contrôle poussé de la pureté spectrale des lasers à  $\text{CO}_2$  et de la qualité optique de faisceaux de grand diamètre nous a permis d'observer une largeur de raie de saturation nettement inférieure au kHz (680 Hz HWHM\*), ce qui constitue actuellement un record dans le domaine optique [32].

Il est clair, cependant, qu'il existe une limite technologique à l'utilisation de faisceaux de grands diamètres et d'excellente qualité optique ( $\lambda/10$  au minimum). L'extension au domaine optique de la méthode des champs séparés, proposée par N.F. Ramsey dans le domaine des micro-ondes en 1950 [16], permet de surmonter de façon très élégante cette difficulté. C'est la technique des franges de Ramsey.

L'exploration de cette technique dans le domaine optique, tant d'un point de vue théorique qu'expérimental, et l'évaluation de son potentiel en spectroscopie à ultra-haute résolution, constitue le thème central de ce travail.

L'idée fondamentale de Ramsey est de remplacer une zone de champ unique, par deux zones de champs séparées dans l'espace, présentant une relation de phase bien définie. Le dipôle créé dans la première zone de champ précesse librement entre les deux zones et accumule un déphasage, proportionnel au temps de vol entre les deux zones, qui est sondé dans la seconde zone de champ. La forme de raie d'absorption est alors modulée sinusoidalement et la période de ces oscillations (dites franges de Ramsey) est inversement proportionnelle au temps de vol entre les deux zones. Augmenter la résolution revient alors à augmenter la distance entre zones. Dans le domaine optique, ainsi que nous l'expliquerons en détail dans le Chapitre 1 de ce travail, à cause de la petitesse de la longueur d'onde, la méthode des champs séparés de Ramsey ne fonctionne que si elle est associée à une méthode sub-Doppler.

Les premières propositions réalistes furent celles de Baklanov et Chebotayev en 1976, tant en spectroscopie de saturation [17] qu'en spectroscopie à deux photons [18]. Ils proposèrent, en spectroscopie de saturation, d'utiliser une triple onde stationnaire et les premières expériences de franges de Ramsey dans le domaine optique [19-24] utilisèrent cette géométrie. Au cours de ce travail, nous avons proposé et démontré expérimentalement que l'on pouvait également utiliser une géométrie comportant quatre ondes progressives, avec un certain nombre d'avantages sur la triple onde stationnaire [25 - 28].

---

\* HWHM : Half-Width at Half Maximum.

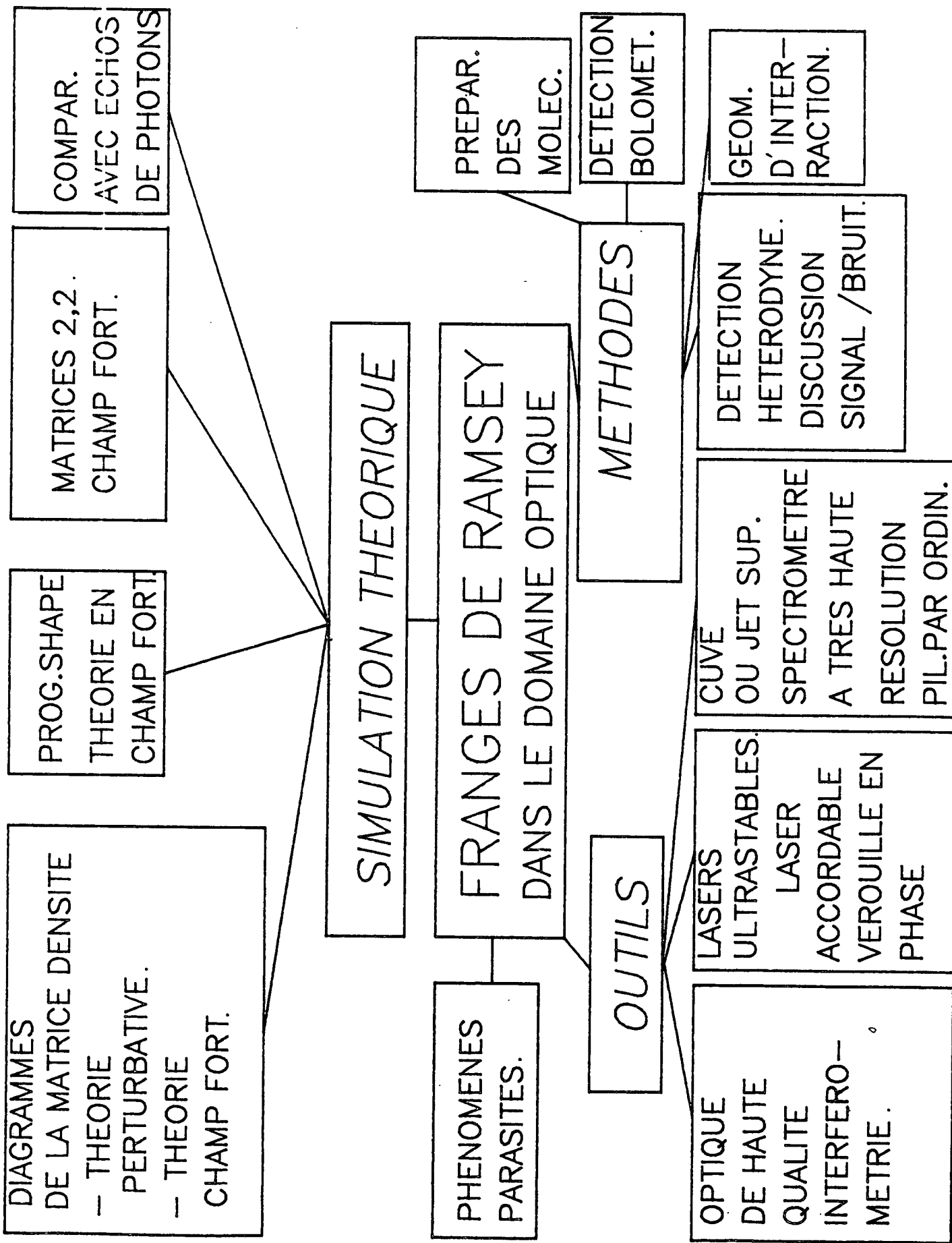


FIGURE 1

C'est ainsi que le Chapitre 1 présente, de façon détaillée, une théorie en champ fort des franges de Ramsey dans le domaine optique, qui permet de comparer les diverses géométries d'interaction pour les franges [27]. Nous verrons que des diagrammes de matrice densité, en champ fort, permettent de retrouver très simplement les résultats des calculs et de faire le lien avec les échos de photons. Enfin, comme cela est schématisé sur l'organigramme de la Figure 1, nous donnerons quelques résultats obtenus à l'aide d'un programme de résolution numérique des équations de la matrice densité qui tiennent compte de la géométrie gaussienne des faisceaux [29, 40].

Le Chapitre 2, présente les outils et les méthodes (voir Fig. 1) qui ont été développés pour tenter d'observer des franges de Ramsey à ultra-haute résolution en cuve et sur jet supersonique. Il va de soi qu'obtenir la plus haute résolution possible, c'est-à-dire les raies les plus étroites possibles, nécessite des lasers ayant la plus haute pureté spectrale possible, ainsi que des faisceaux de la plus haute qualité optique possible. En retour, ces résonances ultra-fines permettront de réaliser des lasers très stables en fréquence..

La description des outils qui ont été développés, constitue ce Chapitre 2 :

- réalisation d'une optique originale pour les franges de Ramsey, fondée sur l'utilisation de coins de cube rétrorélecteurs creux, de grandes dimensions et de haute qualité optique ( $\lambda/20$ ) [30];
- réalisation d'un interféromètre de Michelson, modifié par l'adjonction d'un coin de cube et d'un miroir à mercure, d'ouverture 70 mm;
- verrouillage en phase d'un laser à  $\text{CO}_2$  accordable sur un laser de très haute pureté spectrale (10 Hz) [31];
- pilotage de l'expérience par micro-ordinateur.

Ces réalisations constituent un spectromètre infrarouge dont le pouvoir de résolution est supérieur à  $10^{10}$  ( $5 \times 10^{10}$  pour la molécule  $\text{OsO}_4$ ), et dont la précision absolue en fréquence est actuellement de l'ordre de 1 à 3 kHz.

Les signaux de franges de Ramsey n'ont pu être observés que dans l'expérience sur jet supersonique. Nous montrons, dans le Chapitre 3, pourquoi

avec le montage existant actuellement en cuve, et en dépit des efforts entrepris pour développer des méthodes de détection ultra-sensibles, ces signaux de largeur très faible (90 Hz (HWHM) pour  $\text{SF}_6$ ), n'ont pu être détectés. Nous discutons en détail l'ordre de grandeur des signaux de saturation et de franges de Ramsey à ultra-haute résolution, ainsi que la détectivité ultime du spectromètre sous sa forme actuelle. Tout le soin apporté à la réalisation de ce spectromètre a cependant eu un grand nombre de retombées intéressantes tant en physique moléculaire qu'en métrologie (Fig. 2). Ces résultats sont développés dans ce même Chapitre 3.

C'est en effet la première fois qu'il est possible de réaliser l'investigation, au niveau du kHz de résolution et de précision absolue en fréquence, d'une bande complète de vibration-rotation telle que la bande  $\nu_3$  de  $\text{SF}_6$ . Un certain nombre de phénomènes nouveaux, tels que la brisure du type de symétrie des niveaux rovibrationnels par les interactions hyperfines [33, 34] et l'observation de structures superhyperfines [31, 35], ont été ainsi mis en évidence.

D'un point de vue métrologique, nous avons réalisé une grille d'étalons secondaires de fréquence dans la région spectrale de 10  $\mu\text{m}$ , directement reliée à l'horloge à césium, et qui possède une précision absolue de 1 à 3 kHz [36, 37].

Enfin, le Chapitre 4 présente les franges de Ramsey qui ont été observées, dans la région spectrale de 10  $\mu\text{m}$ , sur un jet supersonique de  $\text{SF}_6$ , par détection bolométrique et détection optique directe [25, 26, 38]. Les signaux obtenus sont comparés à la théorie développée au Chapitre 1, et les avantages respectifs des deux modes de détection employés seront discutés.

La Conclusion souligne le potentiel de la technique des franges de Ramsey en spectroscopie à ultra-haute résolution et pour les étalons optiques de fréquence. Sont également dégagés les perspectives et développements possibles des recherches qui ont été présentées dans ce travail.



FIGURE 2

## OBJECTIFS

*LA PLUS HAUTE RESOLUTION POSSIBLE.  
LA MEILLEURE EXACTITUDE POSSIBLE. ETALONNAGE  
ABSOLU EN FREQUENCE/A L HORLOGE A CESIUM.  
LASERS PRESENTANT LA PLUS HAUTE STABILITE DE FREQUENCE POSSIBLE.  
COMPREHENSION DES PHENOMENES TRANSITOIRES  
COHERENTS LORS DE L INTERACTION LASER, MATIERE .*

## APPLICATIONS

### SPECTROSCOPIE MOLECULAIRE

*A TRES HAUTE RESOLUTION.*

*DECOUVERTES DE NOUVELLES STRUCTURES:  
EX: SF<sub>6</sub>. INVESTIGATION AU NIVEAU DU KHZ  
D UNE BANDE DE VIBRATION-ROTATION.  
STRUCTURES HYPERFINES , SUPERHYPERFINES.*

### METROLOGIE

*REALISATION D'ETALONS  
SECONDAIRES DE  
FREQUENCE .  
VERS UNE HORLOGE  
OPTIQUE .*

## RETOMBÉES

*OPTIQUE DE HAUTE QUALITE  
INTERFEROMETRIE .  
LASERS STABILISES, LIDARS A LONGUE PORTEE, ...  
CONTROLE ANGULAIRE DE FAISCEAUX LASER .  
PHOTOCHEMIE: PREPARATION DE MOLECULES DANS UN  
ETAT DE SYMETRIE BIEN DEFINI.*

## CHAPITRE 1

### THÉORIE DES FRANGES DE RAMSEY EN ONDES PROGRESSIVES OU STATIONNAIRES DANS LE DOMAINE OPTIQUE

## 1.1 INTRODUCTION

Toute théorie réaliste des franges de Ramsey doit maintenant tenir compte des effets suivants : géométrie gaussienne des faisceaux, effet de recul, effet Doppler du second ordre, collisions ... . En effet, à très haute résolution, (1e kHz du visible à l'infrarouge), la géométrie des faisceaux (diamètre et qualité des fronts d'ondes) joue un rôle prépondérant; c'est la principale limitation à la largeur de raie. Pour le calcium par exemple, à 6573 Å, une demi-largeur de raie de 1 kHz a été obtenue par R.L. BARGER [ 22 ] en franges de Ramsey, alors que l'écartement du doublet de recul s'élève à 23,1 kHz, l'effet Doppler du second ordre à 1,1 kHz et la largeur naturelle à 408 Hz. Pour le méthane à 3,39  $\mu\text{m}$ , l'effet de recul vaut 2,16 kHz, la largeur naturelle est beaucoup plus faible (3 Hz), le déplacement dû à l'effet Doppler du second ordre s'élève à 150 Hz, et la largeur de raie vaut également 1 kHz (HWHM).

Avec des molécules lourdes telles que  $\text{OsO}_4$  à 10,6  $\mu\text{m}$ , l'effet de recul (15 Hz) et le déplacement dû à l'effet Doppler du second ordre (3 Hz) sont beaucoup plus faibles. Nous avons obtenu une demi-largeur de raie de 680 Hz avec cette molécule, à l'aide d'un faisceau d'excellente qualité optique et d'ouverture 11 cm.

Dans une approche perturbative, (théorie en champ laser faible, au quatrième ordre de perturbation), il a été possible d'obtenir une forme de raie en spectroscopie de saturation et en spectroscopie à deux photons (ordinaire ou en franges de Ramsey) qui tienne compte de la plupart des effets précédents [ 39-42, 103 ] . Cette approche perturbative a suscité le développement de diagrammes pour la matrice densité du système, qui visualisent les phénomènes et permettent à l'aide de règles très simples d'étudier une grande variété de processus non linéaires (DFTPS, CARS, ...). Cependant, dans le régime dit de "vol libre" (à très basse pression, ou en jet supersonique, par exemple) où chaque molécule "voit", au cours de sa traversée du faisceau, la distribution d'intensité et la modulation de la phase du champ laser, cette approche perturbative ne permet pas d'expliquer un certain nombre de phénomènes qui seront présentés dans la suite de ce travail; citons : les oscillations de Rabi, le passage adiabatique rapide, l'existence d'un optimum d'intensité pour les franges de Ramsey, (impulsion  $\pi/2$ ), etc... .

Pour ces effets, une théorie en champ fort est indispensable; dans le cas général, celle-ci ne pourra être que numérique et nous donnerons un certain nombre de résultats obtenus à l'aide d'un programme numérique de résolution des équations de la matrice densité, le programme SHAPE [29 , 40] .

Dans certaines conditions, une théorie analytique en champ fort, fondée sur l'utilisation de matrices (2,2) est réalisable et conduit à des résultats extrêmement simples. Il nous sera ainsi possible de développer dans le Chapitre 1, la théorie des franges de Ramsey en ondes progressives; puis, celle-ci sera comparée à la théorie utilisant une triple onde stationnaire. Des diagrammes de la matrice densité, en champ fort, permettront encore de calculer très simplement les signaux de franges de Ramsey dans les deux géométries et feront le lien avec les échos de photons.

Le traitement de l'effet de recul (échanges d'impulsion entre le système moléculaire et la lumière) nécessite une quantification du mouvement de translation du centre de masse des molécules. Ceci implique le choix d'une représentation parmi  $|\vec{r}\rangle$ ,  $|\vec{p}\rangle$ , la représentation de Wigner [179], ou enfin la représentation de Shirley-Stenholm [180]. Pour la spectroscopie sub-Doppler qui nous intéresse ici, les équations sont plus faciles à comprendre et à résoudre en représentation d'impulsion. Cependant, la dépendance spatiale du champ est plus commodément décrite en représentation  $|\vec{r}\rangle$ . Si l'on se souvient que l'on a affaire la plupart du temps à des ondes quasi-planes, il va être possible, dans une approche de paquets d'ondes de travailler en représentation  $|\vec{r}\rangle$  tout en gardant une image du peigne discret qui existe dans l'espace des impulsions.\*

### Le système physique

Nous considérons un ensemble de systèmes à deux niveaux a et b ( $E_b > E_a$ ) de constantes de relaxation  $\gamma_a$  et  $\gamma_b$ , en interaction avec une ou plusieurs ondes progressives, de même fréquence  $\omega$ , se propageant dans deux directions opposées + ou - . Nous supposons que les constantes de relaxation  $\gamma_a$  et  $\gamma_b$  sont purement des termes de départ des niveaux a et b. Il n'y a pas de relaxation couplant les niveaux a et b.

Dans le repère du laboratoire, les champs électriques  $\vec{E}^{\pm}(\vec{r}, t)$  associés aux ondes (+) ou (-) peuvent s'écrire :

$$\vec{E}^{\pm}(\vec{r}, t) = \text{Re } \hat{e}^{\pm} E^{\pm} U^{\pm}(\vec{r}) \exp[i(\omega t \mp kz + \phi^{\pm})]$$

---

\* Récemment, on a montré l'équivalence des approches utilisant la fonction de Wigner ou les paquets d'ondes pour la matrice densité [117].

où  $\hat{e}^\pm$ ,  $E^\pm$ ,  $U^\pm(\vec{r})$ ,  $\varphi^\pm$  représentent respectivement, le vecteur polarisation, l'amplitude, la structure géométrique du champ et la phase de chaque onde. Les ondes ( $\pm$ ) se propagent suivant l'axe Oz.

Pour le mode  $TEM_{00}$  d'un laser (Fig. 1.1.1) :

$$U^\pm(x,y,z) = L^\pm(z) \exp \left[ - L^\pm(z) \frac{(x^2 + y^2)}{w_\pm^2} \right]$$

$$L^\pm(z) = \frac{1}{1 \mp 2i \frac{z-z_\pm}{b_\pm}} = \frac{w_\pm^2}{w_\pm^2(z)} \pm i \frac{b}{2R_\pm(z)}$$

où  $b_\pm = k w_\pm^2$  est le paramètre confocal.

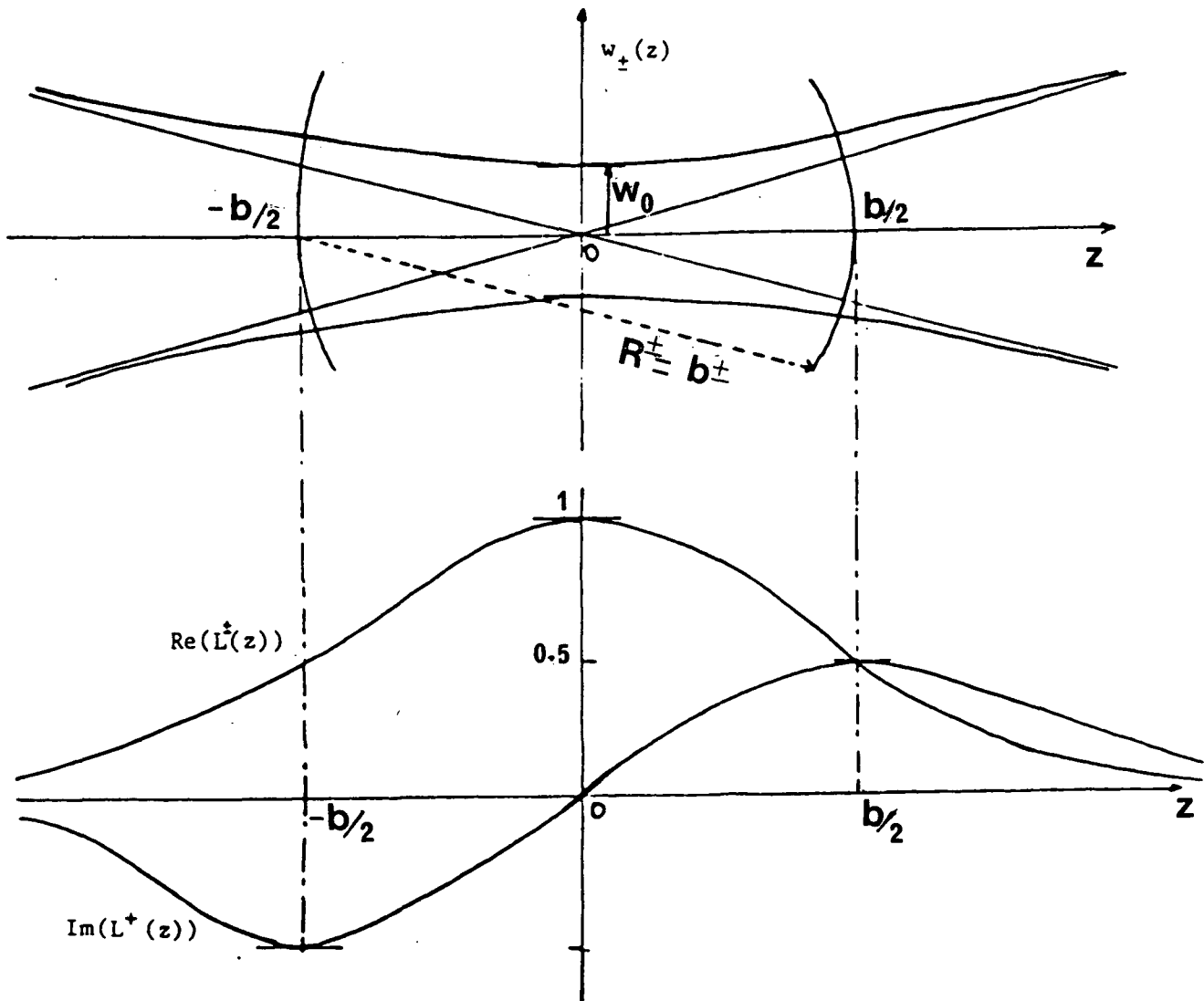


FIGURE 1.1.1

Pour toute la suite nous supposons les faisceaux adaptés  $w_+ = w_- = w_0$  et  $R_+ = R_-$ . Par définition nous prenons l'origine au col (waist) commun aux deux ondes :  $z_{\pm} = 0$ . Le paramètre confocal  $b = kw_0^2$  est commun aux deux ondes et toute l'information sur la géométrie des faisceaux est contenue dans la lorentzienne complexe  $L^{\pm}(z) = \frac{1}{1 \mp \frac{2iz}{b}}$ . La partie réelle de  $L^{\pm}(z)$  et la partie imaginaire de  $L^+(z)$  sont représentées sur la figure 1.1.1.

Noter que, c'est en  $z = \frac{b}{2}$  que la partie imaginaire de  $L^{\pm}(z)$  est maximale; le rayon de courbure  $y$  est égal au paramètre confocal.

Si nous supposons que les dimensions du faisceau deviennent très grandes devant la longueur d'onde,  $b$  est grand, et  $L^{\pm}(z) \equiv 1$ .

On obtient pour  $U^{\pm}$  une variation en :

$$\exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{w_0^2}\right)$$

Le cas limite des ondes planes est alors retrouvé en prenant  $w_0 \rightarrow +\infty$  ce qui donne  $U^{\pm} = 1$ .

En faisceaux gaussiens, à la différence des ondes planes, nous avons une distribution de vecteurs d'onde  $\vec{k}$  :  $\Delta k_x$ ,  $\Delta k_y$ ,  $\Delta k_z$ .

$$k_x^2 + k_y^2 + k_z^2 = k^2 = \frac{\omega^2}{c^2}$$

$$k_x, k_y \ll k_z \approx k$$

La transformation de Fourier relie les largeurs  $\Delta k_x$  et  $\Delta x$  :  $\Delta x \cdot \Delta k_x \approx 1$ . Par conséquent :

$$\Delta k_x, \Delta k_y \approx \frac{1}{w_0} \ll k$$

De même :

$$\Delta k_z \sim 1/b \ll k$$

Dans la suite de ce chapitre, nous supposons pour simplifier, les fonctions  $U^{\pm}$  réelles (la courbure des fronts d'ondes est négligée), et centrées à l'origine. L'axe Oz étant choisi suivant la direction de propagation des faisceaux, la vitesse  $\vec{v}$  de chaque molécule se décompose en  $v_z$  et  $v_{\perp}$ . Il sera toujours possible de faire une rotation des axes de façon à obtenir  $v_y = 0$  (Fig. 1.1.2).  $v_x$  est alors la direction de traversée des faisceaux et nous négligerons dans un premier temps la dimension (verticale) y.

Nous calculons maintenant la réponse individuelle de chaque molécule au cours de la traversée des faisceaux, en fonction de la vitesse et des caractéristiques des faisceaux (intensité, profil,...). Il restera ensuite à effectuer une intégration sur les conditions initiales, qui dépendent de la géométrie de l'expérience envisagée (jet ou cuve, température,...).

Soit une molécule formée dans le niveau fondamental a, avec une impulsion  $\vec{p}_0$ .

Elle se déplace à une vitesse  $\vec{v} = \frac{\vec{p}_0}{MY}$  où  $\gamma = (1 - v^2/c^2)^{-1/2}$ . Nous nous bornerons ici à utiliser les règles habituelles, justifiées dans la référence [41], pour l'introduction du déplacement de l'effet Doppler du second ordre. A l'aide d'une transformation de Lorentz, nous pouvons écrire les champs dans le repère de la molécule :

$$\vec{E}^{\pm}(\vec{r}, t) = \text{Re } \vec{e}^{\pm} E^{\pm} U^{\pm}(v_x(t-t_1)) \exp \left\{ i \left[ \gamma \omega t \mp k v_z t \mp k z + \phi^{\pm} \right] \right\} \quad (1.1)$$

où l'instant  $t_1$  est choisi lorsque la molécule passe à l'origine ( $x = 0$ ).

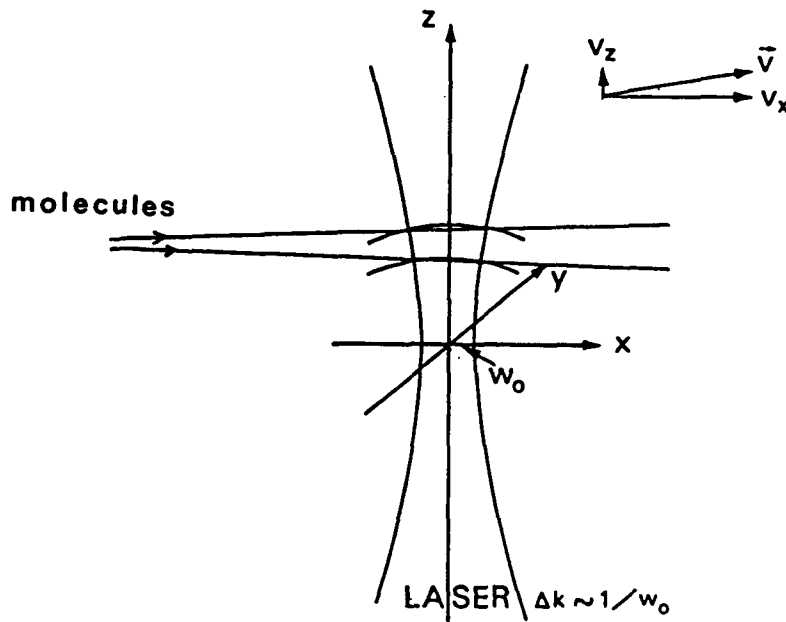


FIGURE 1.1.2

## 1.2 LES ÉTATS D'ÉNERGIE-IMPULSION (FIG. 1.2.1)[41]

### 1.2.1 CAS DES ONDES PLANES

Supposons tout d'abord que les ondes ( $\pm$ ) soient parfaitement planes. Portons sur un diagramme l'énergie totale  $E + \frac{p_z^2}{2M}$  en fonction de  $p_z$ , ayant choisi l'origine en  $\vec{p}_0$  (impulsion de la molécule avant toute interaction avec les champs ( $\pm$ )).

De la conservation de l'impulsion totale (photon + molécule) il ressort clairement que la fonction d'onde du système, après interaction avec les ondes ( $\pm$ ), devient une superposition linéaire des fonctions d'ondes associées à chacun des états d'énergie-impulsion  $\langle \alpha | \langle m |$  séparés de  $\pm \hbar \vec{k}$ ,  $2\hbar \vec{k}$ , ...  $m\hbar \vec{k}$  où  $m$  est le nombre net de quanta d'impulsion échangés avec les champs, à partir de  $\vec{p}_0$ , et où  $\alpha = a$  ou  $b$ .

La figure 1.2.1 est une représentation du développement de Fourier habituel de la fonction d'onde du système en  $\sum_m \lambda_m \exp i m \vec{k} \cdot \vec{r}$ . La représentation d'impulsion est clairement la plus indiquée ici, et l'effet de recul est immédiatement décrit par une "correction cinétique"  $m^2(\hbar k)^2/2M$  à l'énergie  $E_\alpha$  de chaque état d'énergie-impulsion  $\langle \alpha | \langle m |$ .

Par exemple, si seule l'onde (+) est présente sur le système, il suffit de ne prendre en considération que les deux états  $m_a = 0$  et  $m_b = 1$ . De même, si l'onde (+) est intense et l'onde (-) d'intensité faible, seuls les quatre états  $(E_a, \vec{p}_0 - 2\hbar \vec{k})$ ,  $(E_b, \vec{p}_0 - \hbar \vec{k})$ ,  $(E_a, \vec{p}_0)$ ,  $(E_b, \vec{p}_0 + \hbar \vec{k})$  sont couplés. (Ceci est également le cas lorsque les 2 champs sont forts, si l'effet de recul est bien résolu). La résolution des équations d'évolution de la matrice densité [39,42] fournit le doublet de recul en spectroscopie de saturation.

### 1.2.2 DEUX DESCRIPTIONS POSSIBLES

Cependant, la structure géométrique des champs est plus commodément décrite en représentation  $|\vec{r}\rangle$  et en général, les ondes ne sont pas planes. Toutefois, en spectroscopie à très haute résolution (sub-Doppler) nous avons affaire à des ondes quasi-planes ( $\Delta k_x, \Delta k_y, \Delta k_z \ll k$ ) et les échanges d'impulsion restent pratiquement discrets. Cette fois, la fonction d'onde du système est une superposition de paquets d'ondes étroits centrés chacun autour de  $\vec{p}_0 + m\hbar \vec{k}$  et nous pourrions encore écrire en représentation  $|\vec{r}\rangle$  :

$$\langle \alpha | \langle \vec{r} | \Psi(t) \rangle = \langle \alpha | \Psi(\vec{r}, t) \rangle = \sum_m \langle \alpha_m | \Psi(\vec{r}, t) \rangle = \sum_m \alpha_m(\vec{r}, t)$$





avec :

$$\begin{aligned} \langle \alpha_m | \Psi(\vec{r}, t) \rangle &= \int_{m\hbar\vec{k}} d^3p \langle \vec{r} | \vec{p} \rangle \langle \vec{p} | \langle \alpha | \Psi(t) \rangle = \\ &= \int_{m\hbar\vec{k}} d^3p \langle \vec{r} | \vec{p} \rangle \langle \alpha | \Psi(p, t) \rangle \end{aligned}$$

où l'intégration sur  $d^3p$  est limitée à un intervalle centré en  $m\hbar\vec{k}$ , à la fois petit devant  $\hbar\vec{k}$  et grand devant  $\hbar/b$  et  $\hbar/w_0$ .

Ainsi,  $\langle \alpha_m | \Psi(\vec{r}, t) \rangle$  est un paquet d'ondes en  $|\vec{r}\rangle$  centré en  $m\hbar\vec{k}$ . Ces paquets d'ondes sont bien résolus dans l'espace des impulsions puisque pour un faisceau gaussien  $\Delta k_x, \Delta k_y \sim \frac{1}{w_0}$  et  $\Delta k_z \sim \frac{1}{b}$  sont tous très petits devant  $k$ .

On trouvera dans les références [41, 29] une présentation formelle des équations de départ pour la fonction d'onde ou plus généralement pour la matrice densité du système, dans le cas des ondes planes et des ondes gaussiennes. L'Appendice 1 rappelle l'équation d'évolution des éléments de matrice densité entre états d'énergie-impulsion. Il est alors possible de décrire le système moléculaire des deux façons suivantes :

1) Le vecteur à deux composantes  $\begin{pmatrix} \langle b | \Psi(\vec{r}, t) \rangle \\ \langle a | \Psi(\vec{r}, t) \rangle \end{pmatrix}$  est obtenu en

sommant sur  $m$  les composantes sur chacun des états d'énergie-impulsion

$$\begin{pmatrix} \langle b | \Psi(\vec{r}, t) \rangle \\ \langle a | \Psi(\vec{r}, t) \rangle \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sum_m b_m(\vec{r}, t) \\ \sum_m a_m(\vec{r}, t) \end{pmatrix}.$$

Nous montrerons plus loin qu'il s'agit alors d'un spineur.

2) Ou bien l'on garde toutes les composantes sur chacun des états d'énergie-impulsion, sous la forme d'un vecteur ayant une infinité de composantes :

$$\begin{pmatrix} \vdots \\ a_{m+2} \\ b_{m+1} \\ a_m \\ b_{m-1} \\ \vdots \end{pmatrix} \quad (1.2)$$

qui ne sont rien d'autres que les composantes du développement de Fourier spatial de  $|\psi(\vec{r}, t)\rangle$ .  $\langle \alpha | \psi(\vec{r}, t) \rangle = \sum_m \alpha_m e^{im(kz + kv_z t)}$  où  $\alpha$  est alternativement a ou b.

La première approche, développée dans les références [25, 43], permet de décrire l'évolution du système à l'aide de matrices  $2 \times 2$ . Nous l'utiliserons au paragraphe 1.4 pour calculer le signal de franges de Ramsey en ondes stationnaires.

La seconde description est plus générale et permet d'introduire très simplement l'effet de recul. Une transformation unitaire unique permettra d'obtenir une matrice hamiltonienne indépendante du temps et de l'espace.

Dans le cas des quatre ondes progressives séparées dans l'espace, elle se ramène au traitement en matrices  $(2 \times 2)$  de l'approche 1. C'est cette description que nous développons maintenant.

### 1.2.3 L'EQUATION DE SCHRÖDINGER

Dans l'approximation dipolaire électrique, nous écrirons l'hamiltonien d'interaction avec les ondes  $(\pm)$   $V^\pm(\vec{r}, t) = -\vec{\mu}_{op} \cdot \vec{E}^\pm(\vec{r}, t)$ . Dans le référentiel lié à la molécule,  $\vec{E}^\pm(\vec{r}, t)$  est donné par l'équation (1.1).

Dans l'approximation des ondes tournantes, l'équation de Schrödinger peut être écrite sous la forme matricielle suivante :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} a_{m+2} \\ b_{m+1} \\ a_m \\ b_{m-1} \\ \vdots \end{pmatrix} &= \begin{pmatrix} -i \frac{E_a}{\hbar} - i(m+2)^2 \delta - \frac{\gamma_a}{2} & 0 & & & \\ & -i \frac{E_b}{\hbar} - i(m+1)^2 \delta - \frac{\gamma_b}{2} & & & \\ & & -i \frac{E_a}{\hbar} - im^2 \delta - \frac{\gamma_a}{2} & & \\ & & & -i \frac{E_b}{\hbar} - i(m-1)^2 \delta - \frac{\gamma_b}{2} & \\ & 0 & & & \ddots \end{pmatrix} \\
 + i \begin{pmatrix} 0 & \Omega_{ba}^- U^- e^{i(\gamma \omega t + kv_z t + kz + \varphi^-)} & 0 & 0 & \\ \Omega_{ba}^- U^- e^{-i(\gamma \omega t + kz + kv_z t + \varphi^-)} & 0 & \Omega_{ba}^+ U^+ e^{-i(\gamma \omega t - kz - kv_z t + \varphi^+)} & 0 & \\ 0 & \Omega_{ba}^+ U^+ e^{i(\gamma \omega t - kz - kv_z t + \varphi^+)} & 0 & \Omega_{ba}^- U^- e^{i(\gamma \omega t + kz + kv_z t + \varphi^-)} & \\ 0 & 0 & \Omega_{ba}^- U^- e^{-i(\gamma \omega t + kz + kv_z t + \varphi^-)} & 0 & \\ & & & & \ddots \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_{m+2} \\ b_{m+1} \\ a_m \\ b_{m-1} \\ \vdots \end{pmatrix} \quad (1.3)
 \end{aligned}$$

où  $\delta = \frac{\hbar k^2}{2M}$  est l'énergie de recul divisée par  $\hbar$  et  $\Omega_{ba}^{\pm} = \langle b | \vec{\mu} \cdot \vec{e}^{\pm*} | a \rangle > \frac{E^{\pm}}{2\hbar}$  sont les pulsations de Rabi des champs ( $\pm$ ).

#### 1.2.4 TRANSFORMATION UNITAIRE; CHANGEMENT DE REFERENTIEL

Rappelons que si l'on fait une transformation unitaire A sur  $|\Psi\rangle$

$$|\tilde{\Psi}\rangle = A|\Psi\rangle \quad \text{avec} \quad AA^{\dagger} = 1$$

l'équation pour le vecteur transformé  $|\tilde{\Psi}\rangle$  s'écrit :

$$i\hbar \frac{\partial |\tilde{\Psi}\rangle}{\partial t} = (\tilde{H} - i\hbar A \frac{\partial A^{\dagger}}{\partial t}) |\tilde{\Psi}\rangle$$

avec  $\tilde{H} = AHA^{\dagger}$ .

La transformation unitaire suivante permet de rendre l'hamiltonien indépendant du temps et de l'espace (à l'exception de la lente dépendance temporelle de  $U^{\pm}$ ) :

$$\begin{pmatrix} \tilde{a}_{m+2} \\ \tilde{b}_{m+1} \\ \tilde{a}_m \\ \tilde{b}_{m-1} \\ \vdots \end{pmatrix} = \exp\left[\frac{i}{2}(E_b + E_a)t/\hbar\right] \begin{pmatrix} \exp\{i/2[-\gamma\omega t - 2(m+2)k(z+v_z t)]\} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \exp\{i/2[\gamma\omega t - 2(m+1)k(z+v_z t)]\} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \exp\{i/2[-\gamma\omega t - 2mk(z+v_z t)]\} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \exp\{i/2[\gamma\omega t - 2(m-1)k(z+v_z t)]\} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_{m+2} \\ b_{m+1} \\ a_m \\ b_{m-1} \\ \vdots \end{pmatrix} \quad (1.4)$$

L'équation d'évolution pour le vecteur transformé s'écrit alors :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} \tilde{a}_{m+2} \\ \tilde{b}_{m+1} \\ \tilde{a}_m \\ \tilde{b}_{m-1} \\ \vdots \end{pmatrix} &= \begin{pmatrix} -\frac{i}{2}(\gamma\omega - \omega_0) - i(m+2)^2 \delta - \frac{\gamma_a}{2} - i(m+2)kv_z & 0 \\ \frac{i}{2}(\gamma\omega - \omega_0) - i(m+1)^2 \delta - \frac{\gamma_b}{2} - i(m+1)kv_z & \\ -\frac{i}{2}(\gamma\omega - \omega_0) - im^2 \delta - \frac{\gamma_a}{2} - imkv_z & \\ 0 & \frac{i}{2}(\gamma\omega - \omega_0) - i(m-1)^2 \delta - \frac{\gamma_b}{2} - i(m-1)kv_z \end{pmatrix} \\
 + i \begin{pmatrix} 0 & \Omega_{ba}^- U^- e^{i\varphi^-} & 0 & 0 \\ \Omega_{ba}^- U^- e^{-i\varphi^-} & 0 & \Omega_{ba}^+ U^+ e^{-i\varphi^+} & 0 \\ 0 & \Omega_{ba}^+ U^+ e^{+i\varphi^+} & 0 & \Omega_{ba}^- U^- e^{i\varphi^-} \\ 0 & 0 & \Omega_{ba}^- U^- e^{-i\varphi^-} & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \tilde{a}_{m+2} \\ \tilde{b}_{m+1} \\ \tilde{a}_m \\ \tilde{b}_{m-1} \\ \vdots \end{pmatrix} \quad (1.5)
 \end{aligned}$$

avec  $\omega_0 = (E_b - E_a)/\hbar$ .

Dans le cas général où les ondes (+) et (-) sont présentes simultanément, cette résolution ne peut se faire que numériquement. Pour des faisceaux gaussiens, ce système (infini) d'équations couplées peut se résoudre numériquement, en tronquant les équations à un ordre donné [40, 29].

### 1.3 CAS DES ONDES PROGRESSIVES SÉPARÉES SPATIALEMENT

#### 1.3.1 EQUATION D'EVOLUTION

Dans le cas où le système moléculaire n'interagit qu'avec des ondes progressives (qui peuvent être successivement des ondes (+) ou (-)), la matrice précédente se décompose en blocs (2 x 2) et nous pouvons considérer indépendamment l'évolution des vecteurs  $\begin{pmatrix} \tilde{b}_{m\pm 1} \\ \tilde{a}_m \end{pmatrix}$  s'il s'agit d'une onde (+) ou des vecteurs  $\begin{pmatrix} \tilde{b}_{m-1} \\ \tilde{a}_m \end{pmatrix}$  s'il s'agit d'une onde (-).  
L'équation :

$$\frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} \tilde{b}_{m\pm 1} \\ \tilde{a}_m \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{i}{2}(\gamma\omega - \omega_0) - i(m\pm 1)^2 \delta - \frac{\gamma_b}{2} & -i(m\pm 1)kv_z & 0 \\ 0 & -\frac{i}{2}(\gamma\omega - \omega_0) - im^2 \delta - \frac{\gamma_a}{2} & -imkv_z \end{pmatrix} + i \begin{pmatrix} 0 & \Omega^\pm U^\pm e^{-i\varphi^\pm} \\ \Omega^\pm U^\pm e^{i\varphi^\pm} & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \tilde{b}_{m\pm 1} \\ \tilde{a}_m \end{pmatrix}$$

s'exprime très simplement à l'aide des matrices de PAULI :  $\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3$  et

l'identité  $\sigma_0 \cdot \sigma_1 = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}$   $\sigma_2 = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}$   $\sigma_3 = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}$

$$\frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} \tilde{b}_{m\pm 1} \\ \tilde{a}_m \end{pmatrix} = \frac{i}{2} (\vec{\Omega}^\pm \cdot \vec{\sigma} + \Omega_0 \sigma_0) \begin{pmatrix} \tilde{b}_{m\pm 1} \\ \tilde{a}_m \end{pmatrix} \quad (1.6)$$

où  $\vec{\Omega}^\pm$  est un champ effectif dont les composantes sont :

$$\vec{\Omega}^\pm \begin{cases} \Omega_1 = 2\Omega_{ba}^\pm U^\pm \cos \varphi^\pm \\ \Omega_2 = 2\Omega_{ba}^\pm U^\pm \sin \varphi^\pm \\ \Omega_3 = \Delta \mp kv_z - [(m\pm 1)^2 - m^2] \delta + i(\gamma_b - \gamma_a)/2 \end{cases} \quad (1.7)$$

$$\Omega_0 = -[(m\pm 1)^2 + m^2] \delta - (2m\pm 1)kv_z + i\gamma_{ba} \quad (1.8)$$

avec  $\Delta = \gamma\omega - \omega_0$  et  $\gamma_{ba} = (\gamma_b + \gamma_a)/2$

Dans (7),  $U^{\pm}$  est une fonction du temps,  $U^{\pm}(v_x(t-t_1))$ , centrée en  $t_1$ . Il est clair que si nous supposons  $U^{\pm} = \text{cste} = 1$  dans chaque zone de champ, l'équation (1.6) s'intègre aisément entre  $t_0$  et  $t$  :

$$\begin{pmatrix} \tilde{b}_{m\pm 1}(t) \\ \tilde{a}_m(t) \end{pmatrix} = \exp \left[ \frac{i}{2} \Omega_0 \sigma_0 (t-t_0) \right] \exp \left[ \frac{i}{2} \vec{\Omega}^{\pm} \cdot \vec{\sigma} (t-t_0) \right] \begin{pmatrix} \tilde{b}_{m\pm 1}(t_0) \\ \tilde{a}_m(t_0) \end{pmatrix} \quad (1.9)$$

A l'aide de la formule :

$$\exp \left[ \frac{i}{2} \vec{\Omega} \cdot \vec{\sigma} (t-t_0) \right] = \sigma_0 \cos \frac{\Omega(t-t_0)}{2} + i \hat{n} \cdot \vec{\sigma} \sin \frac{\Omega(t-t_0)}{2} = \begin{pmatrix} A & B e^{-i\varphi^{\pm}} \\ C e^{i\varphi^{\pm}} & D \end{pmatrix} \quad (1.10)$$

avec  $\hat{n} = \vec{\Omega}/\Omega$  (1.11)

et  $\Omega^2 = \vec{\Omega}^2 = \Omega_3^2 + 4\Omega_{ba}^2$  (1.12)

et où :

$$A = \cos \frac{\Omega(t-t_0)}{2} + i \frac{\Omega_3}{\Omega} \sin \frac{\Omega(t-t_0)}{2}, \quad D = \cos \frac{\Omega(t-t_0)}{2} - i \frac{\Omega_3}{\Omega} \sin \frac{\Omega(t-t_0)}{2}$$

$$B = C = 2i \frac{\Omega_{ba}}{\Omega} \sin \frac{\Omega(t-t_0)}{2} \quad (1.13)$$

nous définissons une matrice de transfert entre  $t_0$  et  $t$ . Il devient alors extrêmement simple de calculer la fonction d'onde du système interagissant avec une succession quelconque d'ondes progressives, séparées par des zones de précession libre de durée  $T$  où l'opérateur d'évolution se réduit à la matrice diagonale

$$\exp \left[ \frac{i}{2} \Omega_0 \sigma_0 T \right] \begin{pmatrix} e^{i\Omega_3 T/2} & 0 \\ 0 & e^{-i\Omega_3 T/2} \end{pmatrix} = \exp \left[ \frac{i}{2} \Omega_0 T \right] \exp \left[ i \Omega_3 \sigma_3 \frac{T}{2} \right] \quad (1.14)$$

### 1.3.2 INTRODUCTION DU SPIN FICTIF

En l'absence de relaxation, les matrices  $\begin{pmatrix} A & Be^{-i\varphi^+} \\ Ce^{i\varphi^+} & D \end{pmatrix}$  sont

unimodulaires ( $AD - BC = 1$ ) et vérifient les conditions d'unitarité :  $A = D^*$ , et  $Ce^{i\varphi^+} = -(Be^{-i\varphi^+})^*$ , (transformations du groupe  $SU(2)$ ), de sorte que le vecteur à 2 composantes  $\begin{pmatrix} b \\ a \end{pmatrix}$  est un spineur tridimensionnel de rang 1.

Les deux composantes  $(b, a)$  se transforment comme les composantes de la fonction d'onde d'un spin 1/2 évoluant dans un espace abstrait à trois dimensions; elles forment la base d'une représentation irréductible de dimension 2 du groupe des rotations. Comme, à tout spineur  $\begin{pmatrix} b \\ a \end{pmatrix}$  on peut associer un vecteur à trois composantes évoluant dans un espace abstrait (analogue à l'espace réel), nous pourrions ainsi définir le vecteur de Bloch ou pseudo-spin du système par ses trois composantes :

$$\vec{R} \begin{cases} ba^* + ab^* \\ i ba^* - i b^* a \\ bb^* - aa^* \end{cases} \quad (1.15)$$

Ainsi à chaque spineur  $\begin{pmatrix} \tilde{b}_{m\pm 1} \\ \tilde{a}_m \end{pmatrix}$  nous associerons un vecteur  $\vec{R}_m^\pm$  de composantes :

$$\vec{R}_m^\pm \begin{cases} \tilde{a}_m \tilde{b}_{m\pm 1}^* + c.c \\ i \tilde{b}_{m\pm 1} \tilde{a}_m^* + c.c \\ \tilde{b}_{m\pm 1} \tilde{b}_{m\pm 1}^* - \tilde{a}_m \tilde{a}_m^* \end{cases} \quad (1.16)$$

où, rappelons-le, le signe  $\pm$  correspond au sens de propagation des faisceaux lasers.

De l'équation (1.6), nous déduisons l'équation d'évolution du pseudo-spin  $\vec{R}_m^\pm$  :

$$\frac{d\vec{R}_m^\pm}{dt} = \vec{R}_m^\pm \wedge \vec{\Omega}^\pm \quad (1.17)$$



qui n'est autre qu'une rotation autour du vecteur champ effectif  $\vec{\Omega}^{\pm}$  à la vitesse angulaire  $-|\vec{\Omega}^{\pm}|$ . Il est clair qu'il est aussi possible de résoudre l'équation d'évolution (1.17) au lieu de l'équation (1.6). Cependant, elle correspond à l'utilisation de matrices (3x3), beaucoup moins commodes à utiliser lorsque le nombre de zones de champs et de zones de précession libre devient important.

Le formalisme en matrice (2x2) est nettement préférable ici. Le seul avantage de l'image du spin fictif est de donner une représentation géométrique commode des phénomènes transitoires.

En présence de relaxation, les matrices  $\begin{pmatrix} A & Be^{-i\varphi^{\pm}} \\ Ce^{i\varphi^{\pm}} & D \end{pmatrix}$  restent unimodulaires mais les transformations ne sont plus unitaires. Il est encore possible de continuer à décrire le système par un spineur quadridimensionnel dans un modèle de relaxation simplifié où l'on attribue à chaque niveau  $\alpha$  une constante de relaxation  $\gamma_{\alpha}$ ; nous renvoyons le lecteur à la référence [43]. Notons également qu'en toute rigueur, il est nécessaire de recourir à la matrice densité du système pour introduire les termes de relaxation. Dans le cas où  $\gamma_{ab} = \frac{1}{2}(\gamma_a + \gamma_b)$ , on peut montrer cependant qu'il est mathématiquement correct d'effectuer les calculs sur la fonction d'onde du système.

### 1.3.3 (a) CAS D'UNE ONDE PROGRESSIVE UNIQUE

A partir du système dans l'état fondamental, spineur  $\begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$ , une onde progressive ne couplera que les deux états d'énergie-impulsion  $|a, m_a = 0\rangle$  et  $|b, m_b = 1\rangle$  s'il s'agit de l'onde (+) où  $|a, m_a = 0\rangle$  et  $|b, m_b = -1\rangle$  s'il s'agit de l'onde (-). Supposons qu'il s'agisse de l'onde (+) ( $\Omega^+ = \Omega$ ) :

$$\begin{pmatrix} \tilde{b}_1(t) \\ \tilde{a}_0(t) \end{pmatrix} = \exp\left[\frac{i}{2} \Omega_0 \sigma_0 (t-t_0)\right] \begin{pmatrix} A & Be^{-i\varphi^+} \\ Ce^{i\varphi^+} & D \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} = \exp\left[\frac{i}{2} \Omega_0 \sigma_0 (t-t_0)\right] \begin{pmatrix} Be^{-i\varphi^+} \\ D \end{pmatrix}$$

On en déduit la probabilité de transition du niveau a vers le niveau b, en calculant

$$bb^* = \tilde{b} \tilde{b}^* = BB^* = \exp\left[-\gamma_{ba}(t-t_0)\right] \frac{4\Omega_{ba}^2}{\Omega^*} \left| \sin \frac{\Omega(t-t_0)}{2} \right|^2$$

qui est la formule de Rabi avec relaxation, effet de recul et effet Doppler du premier et du second ordre, ces trois derniers effets étant tous contenus dans  $\Omega$  (formules 1.7).

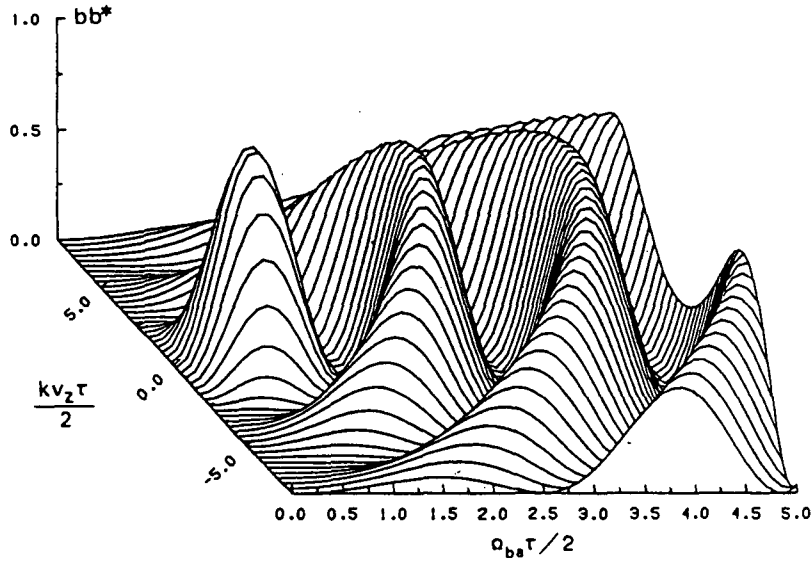


FIGURE 1.3.1

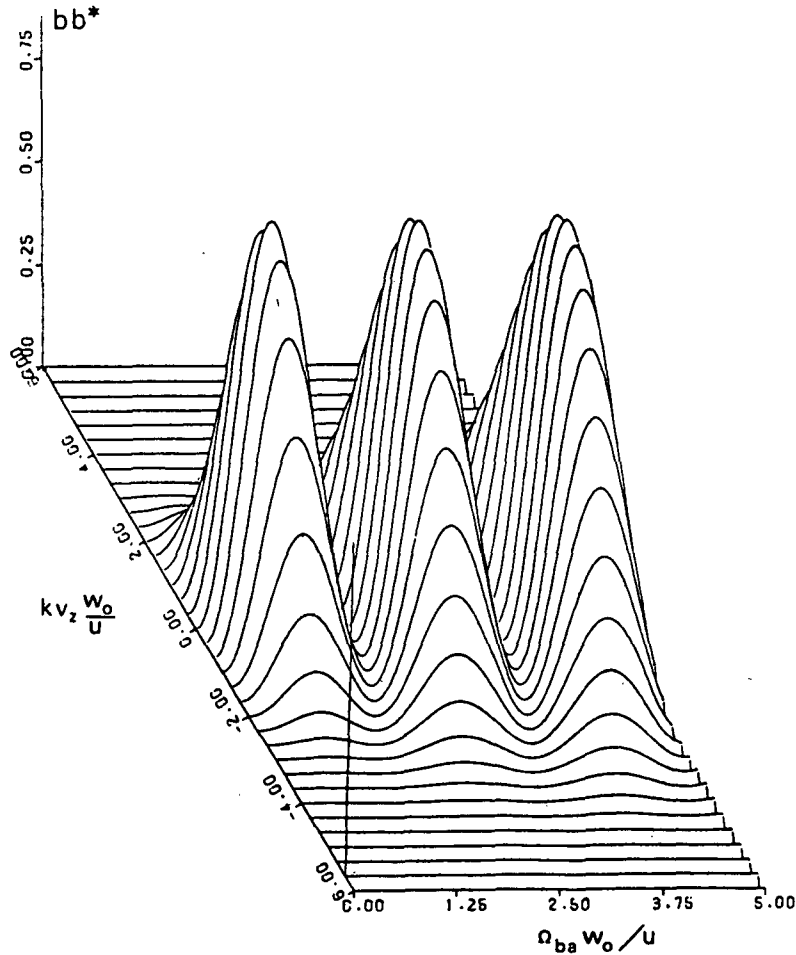


FIGURE 1.3.2

Fig. 1.3.1 - Probabilité de transition pour un système à deux niveaux soumis à une impulsion électromagnétique en forme de créneau de durée  $\tau$  en fonction du champ ( $\Omega_{ba} = \mu E_0 / 2\hbar$ ) et de l'écart à la résonance  $\omega - \omega_0$  (ou du décalage Doppler  $kv_z$ ). A la résonance cette surface donne pour un champ laser donné la forme du trou creusé dans l'espace des vitesses.

Fig. 1.3.2 - Probabilité de transition pour un système à deux niveaux soumis à une impulsion électromagnétique de profil gaussien, en fonction du champ et de l'écart à résonance  $\omega - \omega_0$  (ou du décalage Doppler  $kv_z$ ). La demi-largeur à  $1/e$  de l'impulsion temporelle est  $\omega_0/u$ .

La surface donnant  $bb^*$  en fonction de la pulsation de Rabi multipliée par le temps  $\tau$  d'interaction et en fonction de  $\Omega_3\tau$  est représentée sur la figure 1.3.1. Les oscillations de Rabi apparaissent clairement. Notons que pour  $kv_z\tau \neq 0$ , les oscillations de Rabi ne sont plus en phase avec les oscillations correspondant à  $kv_z\tau = 0$ . Ceci diffère très sensiblement du résultat en ondes gaussiennes pour lesquelles, quel que soit  $v_z$ , les oscillations restent en phase (Fig. 1.3.2). Il est alors facile de donner la trajectoire du spin fictif  $\vec{R}_0^+$  associé (défini par ses composantes (1.16)), (Fig. 1.3.3). Pour simplifier, on fait disparaître, à l'aide d'une transformation unitaire supplémentaire  $e^{i/2 \varphi^\pm \sigma_3}$ , les termes de phase  $e^{\pm i\varphi^\pm}$  dans les matrices  $\begin{pmatrix} A & Be^{-i\varphi^\pm} \\ Ce^{i\varphi^\pm} & D \end{pmatrix}$ , si bien que  $\vec{R}$  a pour composantes :  $(2\Omega_{ba}, 0, \Omega_3)$  et les nouvelles matrices de transformation s'écrivent simplement  $\begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix}$ .

Lorsque l'on néglige la relaxation et que l'on effectue une impulsion  $\pi/2$  à résonance ( $\omega = \omega_0$ ), le vecteur champ  $\vec{\Omega}(2\Omega_{ba}, 0, 0)$  est colinéaire à l'axe (1). A partir de sa position initiale  $(0, 0, -1)$  (système dans l'état fondamental), le vecteur  $\vec{R}$  tourne d'un angle  $\pi/2$  dans le sens rétrograde, autour de l'axe 1.

### 1.3.3 (b) CAS DE DEUX ONDES PROGRESSIVES DE MÊME SENS : FRANGES DE RAMSEY A DEUX ZONES

Ici encore, seuls les deux états d'énergie-impulsion  $a_0$  et  $b_1$  pour l'onde (+) sont couplés. Pour simplifier, nous considérerons deux crêneaux de champ de même durée  $\tau$  et de même intensité. (L'extension à  $\tau' \neq \tau$  ou  $\Omega_2 \neq \Omega_1$  est évidente dans les formules qui suivent).

La figure 1.3.4 représente ces deux crêneaux séparés par une zone noire ainsi que les opérateurs correspondants à chacune de ces trois régions. On a également représenté la trajectoire du spin fictif dans le cas idéal où il bascule de  $\pi/2$  dans chaque zone de champ. Il est alors très simple

de calculer le spineur  $\begin{pmatrix} \tilde{b}_1 \\ \tilde{a}_0 \end{pmatrix}$  à un temps  $t'$  quelconque après la dernière

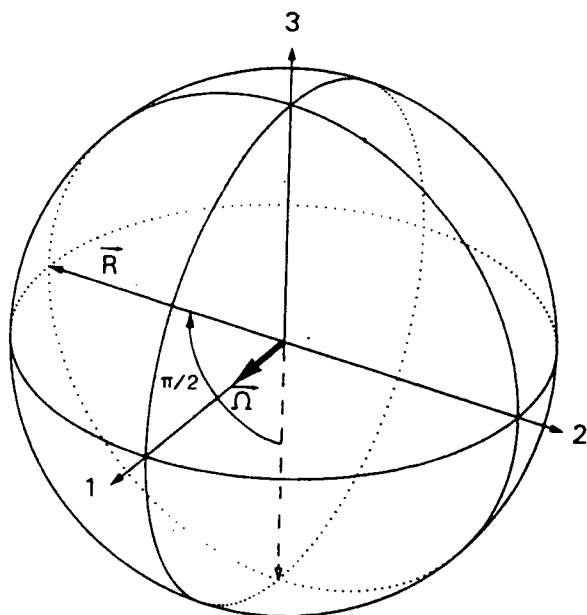


FIGURE 1.3.3  
Impulsion  $\pi/2$  à résonance

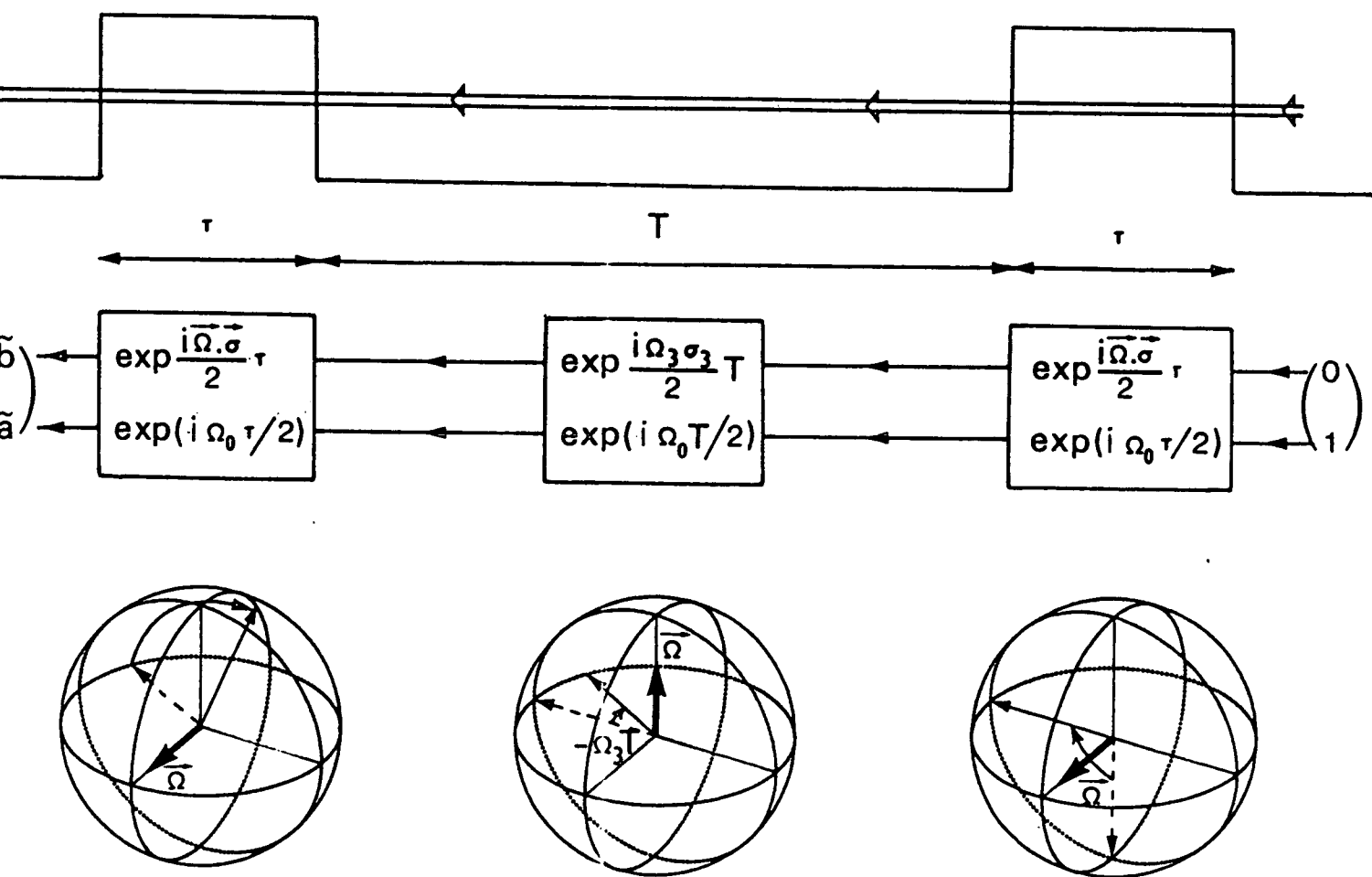


FIGURE 1.3.4

Franges de Ramsey à deux zones de champ et trajectoire simplifiée du spin fictif associé.

zone. Si l'on pose  $T' = t' - T - 2\tau$ , nous avons :

$$\begin{pmatrix} \tilde{b}_1 \\ \tilde{a}_0 \end{pmatrix} = \exp \frac{i}{2} \Omega_0 (T' + T + 2\tau) \begin{pmatrix} e^{i\Omega_3 T'/2} & 0 \\ 0 & e^{-i\Omega_3 T'/2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A_2 & B_2 e^{-i\varphi_2^+} \\ C_2 e^{i\varphi_2^+} & D_2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{i\Omega_3 T/2} & 0 \\ 0 & e^{i\Omega_3 T/2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A_1 & B_1 e^{-i\varphi_1^+} \\ C_1 e^{i\varphi_1^+} & D_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} \quad (1.18)$$

Avec  $\Omega_3 = \Delta - kv_z - \delta + i(\gamma_b - \gamma_a)/2$  et  $\Omega_0 = -\delta - kv_z + i\gamma_{ba}$  qui proviennent de (1.7) et (1.8) avec  $m = 0$ .

En remplaçant les coefficients  $A_i, B_i, C_i, D_i$  ( $i = 1, 2$ ) par leurs expressions (1.13), nous trouvons pour l'amplitude de probabilité dans l'état supérieur après le temps  $T'$  écoulé depuis la dernière zone :

$$\begin{aligned} \tilde{b}_1 = \exp \frac{i}{2} \Omega_0 (T' + T + 2\tau) & \left\{ \left( \cos \frac{\Omega \tau}{2} + i \frac{\Omega_0}{\Omega} \sin \frac{\Omega \tau}{2} \right) e^{i\Omega_3 T/2} 2i \frac{\Omega_{ba}}{\Omega} \sin \frac{\Omega \tau}{2} e^{-i\varphi_1^+} \right. \\ & \left. + 2i \frac{\Omega_{ba}}{\Omega} \sin \frac{\Omega \tau}{2} e^{-i\varphi_2^+} e^{-i\Omega_3 T/2} \left( \cos \frac{\Omega \tau}{2} - i \frac{\Omega_3}{\Omega} \sin \frac{\Omega \tau}{2} \right) \right\} \quad (1.19) \end{aligned}$$

La population  $\tilde{b}_1 \tilde{b}_1^*$  du niveau supérieur s'écrit alors :

$$\begin{aligned} \tilde{b}_1 \tilde{b}_1^* = \exp -\gamma_{ba} (T' + T + 2\tau) \times 16 \frac{\Omega_{ba}^2}{\Omega^2} & \left| \sin \frac{\Omega \tau}{2} \right|^2 \left| \cos \frac{\Omega \tau}{2} \cos \left( \frac{\Omega_3 T}{2} + \frac{\varphi_2^+ - \varphi_1^+}{2} \right) \right. \\ & \left. - \frac{\Omega_3}{\Omega} \sin \frac{\Omega \tau}{2} \sin \left( \frac{\Omega_3 T}{2} + \frac{\varphi_2^+ - \varphi_1^+}{2} \right) \right|^2 \quad (1.20) \end{aligned}$$

formule qui généralise le résultat classique de Ramsey [16] puisqu'elle inclut la relaxation ainsi que l'effet Doppler du premier ordre, du second ordre et l'effet de recul, qui apparaissent tous trois dans  $\Omega_3$ .

$b_1 b_1^*$  est ainsi une fonction oscillante de  $\Omega_3 T$  par les termes :  $\cos \left( \frac{\Omega_3 T}{2} + \frac{\varphi_2^+ - \varphi_1^+}{2} \right)$  et  $\sin \left( \frac{\Omega_3 T}{2} + \frac{\varphi_2^+ - \varphi_1^+}{2} \right)$  dont le module est élevé au carré dans l'expression (1.20).

Si l'on se souvient que  $\Omega_3 = \gamma\omega - \omega_0 - kv_z - \delta + i \frac{(\gamma_b - \gamma_a)}{2}$ ,  $b_1 b_1^*$  est une fonction oscillante de l'écart à résonance, de période  $\frac{1}{T} = \frac{v_x}{D}$  (en Hz).

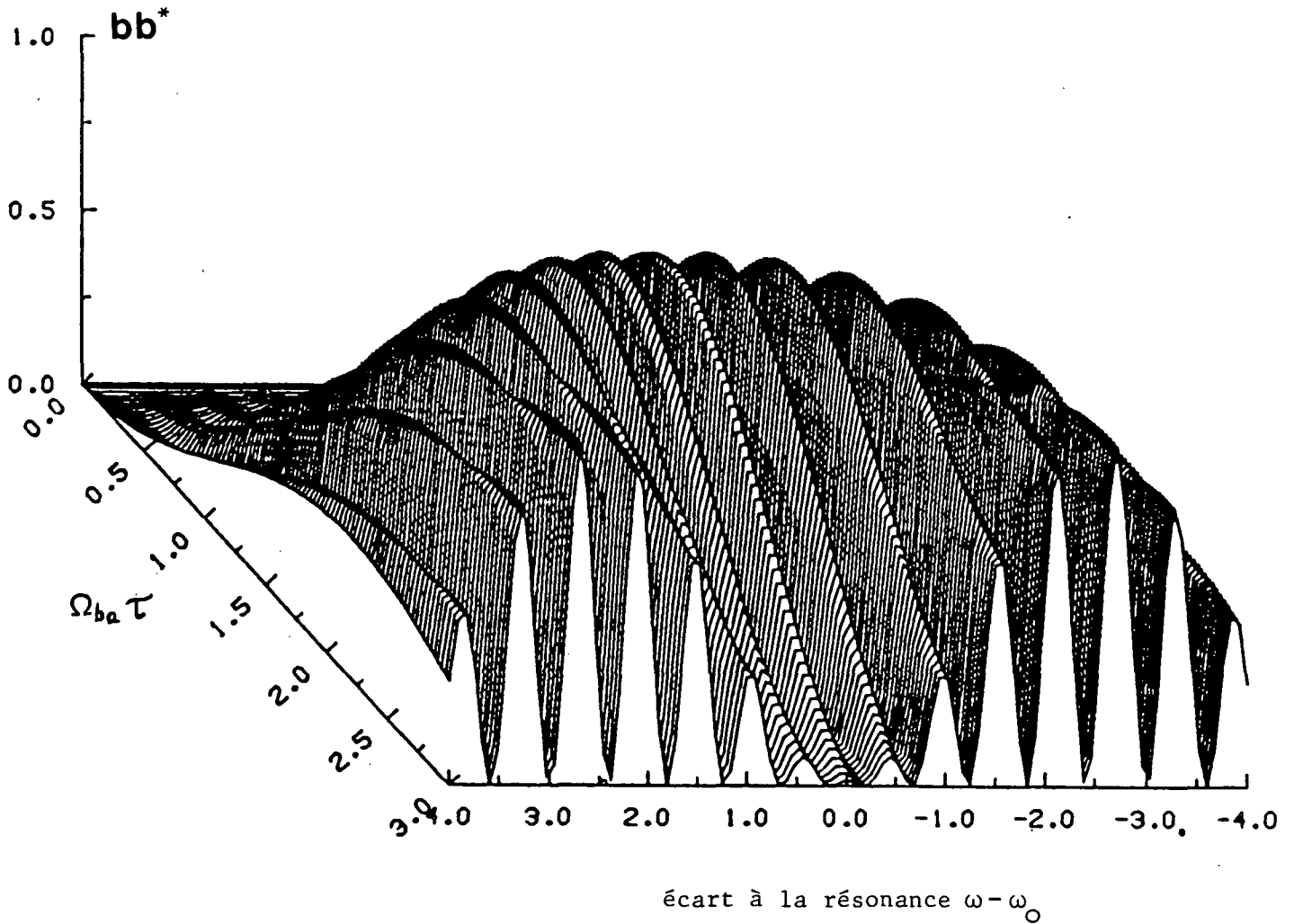


FIGURE 1.3.5

Franges de Ramsey à deux crêneaux de champ : probabilité de transition  $bb^*$  en fonction de l'écart à résonance  $(\omega - \omega_0)$  et de l'amplitude du champ  $\Omega_{ba}$ . Le signal de franges est optimum pour une impulsion  $\pi/2$ . Le dédoublement de l'enveloppe des franges en champ fort est visible au premier plan.

Augmenter la résolution signifie alors augmenter la distance entre les deux zones D ou (et) réduire la vitesse de traversée des faisceaux  $v_x$ .

Les franges de Ramsey à deux zones (en prenant  $kv_z \approx 0$ ), sont représentées sur la figure 1.3.5, en fonction de l'intensité du champ et de l'écart à résonance. On constate qu'au voisinage d'une impulsion  $\pi$ , l'enveloppe des franges se dédouble. (on a négligé la relaxation et pris  $\gamma = 1$ ).

Il est également important de noter la présence du terme de phase  $\phi_2^+ - \phi_1^+$  qui produit un déplacement de la résonance. Celui-ci est en général mesuré en renversant le sens de propagation du jet, ce qui change le signe de ce déplacement.

Cette technique des franges de Ramsey à deux zones a été très largement utilisée dans le domaine des micro-ondes où  $kv_z$  est petit, avec un jet bien collimaté [ 9 ]. En réalité, comme nous le verrons au paragraphe 1.4, il est préférable, pour l'exactitude de la méthode, d'utiliser deux ondes stationnaires au lieu des deux ondes progressives. C'est ainsi que l'étalon primaire de temps et de fréquence, l'horloge à césium, fonctionnant à 9,192 631 77 GHz, repose sur la technique des franges de Ramsey à deux zones de champ en ondes stationnaires. A titre d'exemple, l'horloge NBS-6 présente une distance entre zones de 3,7 m pour une vitesse axiale  $v_x$  de 200 m/s ce qui donne une largeur de franges d'environ 30 Hz [ 44 ]. Cette horloge présente une stabilité de l'ordre de  $10^{-14}$  pour des temps d'intégration supérieurs à  $10^5$  s.

Une description simplifiée des franges de Ramsey à deux zones peut être donnée à l'aide de la trajectoire du vecteur de Bloch, présentée sur la figure 1.3.4. Pour la clarté, nous négligeons la relaxation, nous supposons  $\Omega_3 = 0$  à l'intérieur des deux zones de champ et nous prenons une pulsation de Rabi  $\Omega$  correspondant à une impulsion  $\pi/2$  dans chaque zone.

A partir du vecteur de composantes  $\begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ -1 \end{pmatrix}$  qui représente le système dans l'état du bas, a, une première impulsion  $\pi/2$  crée le vecteur  $\begin{pmatrix} 0 \\ -1 \\ 0 \end{pmatrix}$  qui va précesser librement dans le plan horizontal pendant le temps T entre les deux zones de champ et tourner d'un angle  $-\Omega_3 T$ .

A la fin de la précession, le vecteur s'écrit : 
$$\begin{pmatrix} -\sin \Omega_3 T \\ -\cos \Omega_3 T \\ 0 \end{pmatrix}.$$

Une nouvelle impulsion  $\pi/2$  dans la seconde zone de champ fournit alors le

vecteur 
$$\begin{pmatrix} -\sin \Omega_3 T \\ 0 \\ \cos \Omega_3 T \end{pmatrix}$$
 dont la troisième composante  $\cos \Omega_3 T$  est modulée en amplitude par l'angle de précession  $\Omega_3 T$ .

Des équations :

$$\begin{aligned} bb^* - aa^* &= \cos \Omega_3 T \\ bb^* + aa^* &= 1 \end{aligned}$$

nous déduisons que la population du niveau supérieur

$$bb^* = \frac{1}{2} (1 + \cos \Omega_3 T) \quad (1.20 \text{ bis})$$

est une fonction oscillante de  $\Omega_3 = \gamma\omega - \omega_0 - kv_z$  (franges de Ramsey).

Dans le domaine optique, même avec un jet très bien collimaté, les franges seront brouillées à cause de la distribution des vitesses  $v_z$ , qui crée une distribution des déplacements  $kv_z$  dans les termes oscillants en  $\cos \Omega_3 T$  et  $\sin \Omega_3 T$ . (Il faudrait une collimation du jet au niveau d'une fraction de la longueur d'onde optique).

- Une première méthode, développée par G. KRAMER sur le méthane à  $3,39 \mu\text{m}$  [45] est fondée sur l'utilisation d'une sélection mécanique des vitesses à l'aide d'un réseau de trous espacés de  $\lambda/2$ , et de taille  $\lambda/2$ , afin de bloquer les trajectoires des molécules qui ont une vitesse  $v_z$  donnant un signal de franges en opposition de phase par rapport à la phase choisie. Dès lors, tous les termes en  $\cos(\gamma\omega - \omega_0 - kv_z)T$  s'ajoutent constructivement. La démonstration de cette méthode a cependant été effectuée à l'aide de deux ondes stationnaires dans la référence [45].

- La seconde méthode fait appel aux techniques de l'optique non linéaire où la sélection des vitesses se fait par les molécules ou les atomes eux-mêmes.

- En spectroscopie à deux photons : l'absorption simultanée de deux photons provenant de deux ondes de directions opposées permet de s'affranchir de l'effet Doppler du premier ordre par  $(k^+ - k^-)v_z = 0$  ( $\forall v_z$ ),



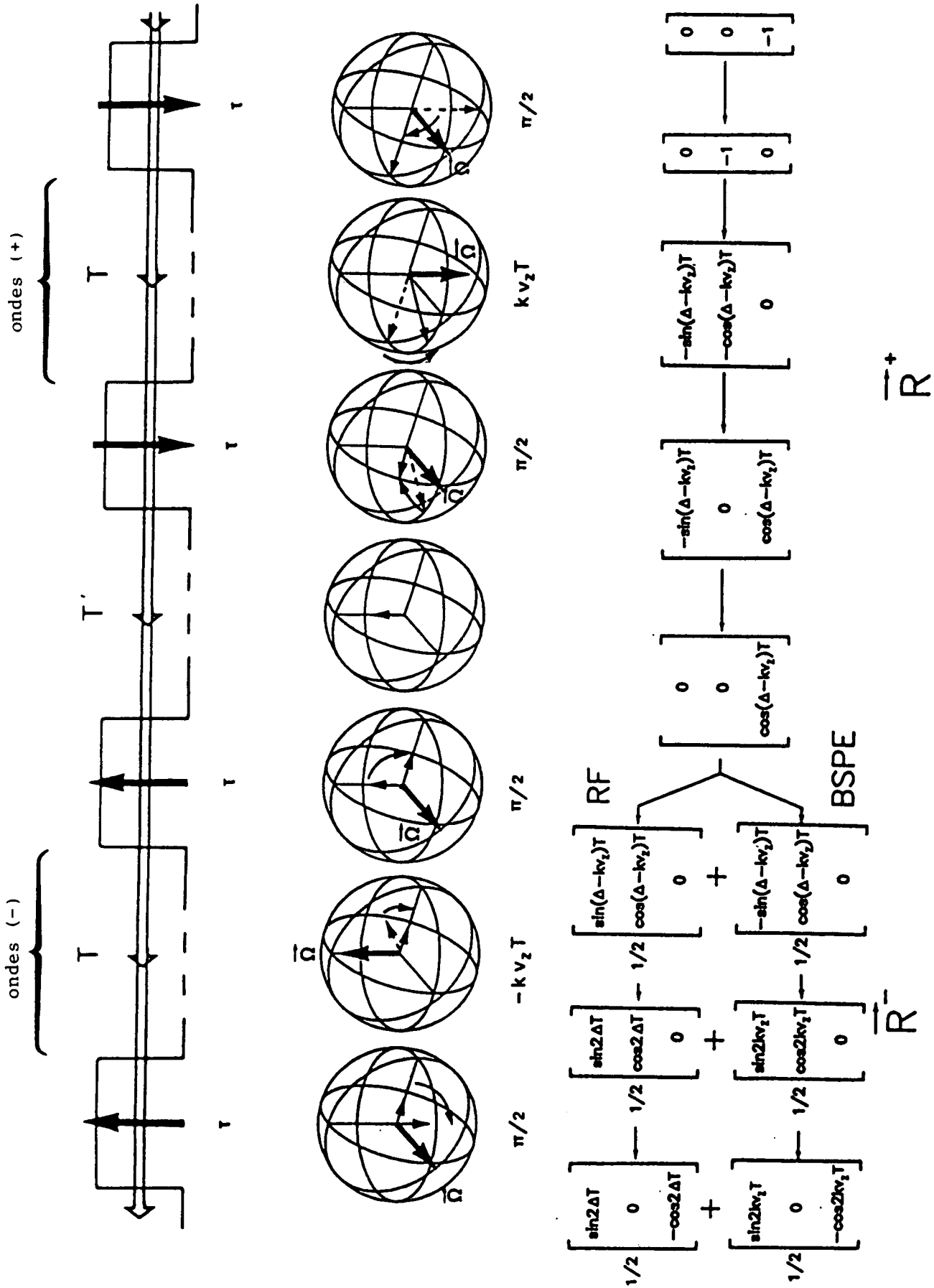


FIGURE 1.3.6 - Principe et illustration schématique des franges de Ramsey (RF) dans le domaine optique, obtenues au moyen de quatre ondes progressives. A chaque étape du processus sont également données les trois composantes des spins fictifs associés  $R^+$  et  $R^-$ . L'écho de photon stimulé vers l'arrière (BSPE) correspondrait au vecteur  $R^-$  avance, qui n'est pas représenté sur la figure et qui double son déphasage Doppler.

ainsi que de l'effet de recul.

Comme l'introduction d'un hamiltonien effectif pour la spectroscopie à deux photons permet de ramener le problème à une transition à un photon [46] sur un système à deux niveaux équivalent, tous les résultats précédents s'appliquent avec les règles de remplacement suivantes [41] :

$$\left\{ \begin{array}{l} \gamma\omega - \omega_{ba} \longrightarrow 2\gamma\omega - \omega_{ca} \\ kv_z \longrightarrow (k^+ - k^-)v_z = 0 \\ \Omega_{ba} \longrightarrow \frac{\Omega_{cb}^+ \Omega_{ba}^-}{\Delta\omega} + \frac{\Omega_{cb}^- \Omega_{ba}^+}{\Delta\omega} \end{array} \right. \quad (1.21)$$

Ainsi la technique des franges de Ramsey et la formule (1.20) sont immédiatement transposables en spectroscopie à deux photons sans effet Doppler. La formule (1.20) donne alors, en champ fort, le signal de franges de Ramsey avec relaxation et effet Doppler du second ordre. De tels signaux ont été observés par LEE, HELMCKE et HALL, sur le bismuth et le rubidium [47], et dans le domaine temporel par M. SALOUR et C. COHEN-TANNOUDJI sur le sodium [86,87].

• En spectroscopie de saturation.

Nous allons montrer maintenant, que dans le domaine optique, il suffit de répéter la double interaction de Ramsey avec deux ondes se propageant, cette fois, en sens inverse des deux premières.

#### 1.3.4. CAS DE DEUX PAIRES D'ONDES PROGRESSIVES DE DIRECTIONS OPPOSEES

##### 1.3.4.1 Formule générale pour les franges de Ramsey dans le domaine optique

La figure 1.3.6 présente la géométrie d'interaction que nous avons proposée et démontrée pour combiner absorption saturée et franges de Ramsey [25-27]. On montre facilement que l'intervalle entre les deux premières zones et les deux dernières doit être le même, sous peine de réduire la taille des franges. Par contre, l'intervalle (ou le temps T') entre les deux zones centrales peut être quelconque si la relaxation du système est suffisamment faible. Pour simplifier, les quatre créneaux sont supposés avoir la même durée  $\tau$ , mais cette hypothèse est très facile à lever dans la formule finale.

Le début du calcul est identique à celui du paragraphe 1.3.3, où nous avons calculé le spineur  $\begin{pmatrix} \tilde{b}_1 \\ \tilde{a}_0 \end{pmatrix}$  à la fin de la zone noire centrale de durée  $T'$  (formule 1.18). Si l'on se reporte maintenant à la figure 1.2.1, il nous faut calculer l'évolution des spineurs  $\begin{pmatrix} \tilde{b}_1 \\ \tilde{a}_2 \end{pmatrix}$  et  $\begin{pmatrix} \tilde{b}_{-1} \\ \tilde{a}_0 \end{pmatrix}$  qui sont les seuls à intervenir au cours des interactions avec les ondes (-). Ces deux spineurs évoluent de façon indépendante à partir des conditions initiales  $\begin{pmatrix} \tilde{b}_1 \\ 0 \end{pmatrix}_i$  à la fin de la zone noire de durée  $T'$ , pour le spineur  $\begin{pmatrix} \tilde{b}_1 \\ \tilde{a}_2 \end{pmatrix}$  et à partir de  $\begin{pmatrix} 0 \\ \tilde{a}_0 \end{pmatrix}_i$  pour le spineur  $\begin{pmatrix} \tilde{b}_{-1} \\ \tilde{a}_0 \end{pmatrix}$ .

Ainsi :

$$\begin{pmatrix} \tilde{b}_{-1} \\ \tilde{a}_0 \end{pmatrix} = \exp\left[\frac{i}{2} \Omega_0 (T + 2\tau)\right] \begin{pmatrix} A_4 & B_4 e^{-i\varphi_4^-} \\ C_4 e^{i\varphi_4^-} & D_4 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{i\Omega_3 T/2} & 0 \\ 0 & e^{-i\Omega_3 T/2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A_3 & B_3 e^{-i\varphi_3^-} \\ C_3 e^{i\varphi_3^-} & D_3 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 \\ \tilde{a}_0 \end{pmatrix}_i$$

$$\Omega_3 = \Delta + kv_z - \delta + i(\gamma_b - \gamma_a)/2, \quad \Omega_0 = -\delta + kv_z + i\gamma_{ba} \quad (1.22)$$

et :

$$\begin{pmatrix} \tilde{b}_1 \\ \tilde{a}_2 \end{pmatrix} = \exp\left[\frac{i}{2} \Omega_0 (T + 2\tau)\right] \begin{pmatrix} A_4 & B_4 e^{-i\varphi_4^-} \\ C_4 e^{i\varphi_4^-} & D_4 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{i\Omega_3 T/2} & 0 \\ 0 & e^{-i\Omega_3 T/2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A_3 & B_3 e^{-i\varphi_3^-} \\ C_3 e^{i\varphi_3^-} & D_3 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \tilde{b}_1 \\ 0 \end{pmatrix}_i$$

ou  $\Omega_3 = \Delta + kv_z + 3\delta + i(\gamma_b - \gamma_a)/2$  et  $\Omega_0 = -5\delta - 3kv_z + i\gamma_{ba}$  (1.23)

En remplaçant  $\begin{pmatrix} 0 \\ \tilde{a}_0 \end{pmatrix}_i$  et  $\begin{pmatrix} \tilde{b}_1 \\ 0 \end{pmatrix}_i$  par leur valeur déduite de (1.18), nous

trouvons, pour la population  $\tilde{b}_{-1}\tilde{b}_{-1}^*$  :

$$\begin{aligned} \tilde{b}_{-1}\tilde{b}_{-1}^* = & e^{-2\gamma_{ba}(T+2\tau)} e^{-\gamma_a T'} \left\{ |B_1 C_2 B_3 A_4|^2 e^{-(\gamma_b - \gamma_a)T} + |B_1 C_2 D_3 B_4|^2 + |D_1 D_2 B_3 A_4|^2 + \right. \\ & \left. |D_1 D_2 D_3 B_4|^2 e^{(\gamma_b - \gamma_a)T} + \left[ B_1 C_2 B_3 A_4 (D_1 D_2 D_3 B_4)^* e^{2i(\Delta - \delta)T} e^{i(\varphi_4^- - \varphi_3^- + \varphi_2^+ - \varphi_1^+)} + c.c. \right] \right\} \end{aligned}$$

+ des termes proportionnels à

$$e^{\pm i k v_z T} \quad \text{et} \quad e^{\pm 2 i k v_z T} \quad (1.24)$$

et pour  $\tilde{b}_1 \tilde{b}_1^*$  :

$$\begin{aligned} \tilde{b}_1 \tilde{b}_1^* = & e^{-2\gamma_{ba}(T+2\tau)} e^{-\gamma_b T'} \left\{ |B_1 A_2 A_3 A_4|^2 e^{-(\gamma_b - \gamma_a)T} + |B_1 A_2 C_3 B_4|^2 + |D_1 B_2 A_3 A_4|^2 + \right. \\ & \left. |D_1 B_2 C_3 B_4|^2 e^{(\gamma_b - \gamma_a)T} + \left[ B_1 A_2 A_3 A_4 (D_1 B_2 C_3 B_4)^* e^{2i(\Delta + \delta)T} e^{i(\varphi_4^- - \varphi_3^- + \varphi_2^+ - \varphi_1^+)} + c.c. \right] \right\} \end{aligned}$$

+ des termes proportionnels à

$$e^{\pm i k v_z T} \quad \text{et} \quad e^{\pm 2 i k v_z T} \quad (1.25)$$

Le terme oscillant de l'expression (1.24),  $e^{2i(\Delta - \delta)T}$ , correspond au système de franges de Ramsey déplacé vers le bleu de la quantité  $\delta$  qui traduit l'effet de recul, tandis que le terme oscillant de l'expression (1.25),  $e^{2i(\Delta + \delta)T}$ , correspond au système de franges déplacé vers le rouge par l'effet de recul.

#### 1.3.4.2 Discussion

• Le signal est obtenu par intégration sur  $v_z$  des expressions précédentes (1.24) et (1.25).

Si la largeur Doppler est grande devant la largeur des franges, les intégrales des termes proportionnels à  $\exp(\pm i k v_z T)$  et  $\exp(\pm 2 i k v_z T)$  sont

négligeables. L'intégrale sur  $v_z$  du coefficient de  $\exp 2i(\Delta \pm \delta)T$  donne l'enveloppe des franges, alors que l'intégrale sur  $v_z$  des autres termes (comme  $|D_1 D_2 B_3 A_4|^2$  par exemple) donne le fond élargi par effet Doppler et par temps de transit fini dans chacune des zones de champ.

• Notons que  $\tilde{b}_{-1} \tilde{b}_{-1}^*$  est proportionnel à  $e^{-\gamma_a T}$ , alors que  $\tilde{b}_1 \tilde{b}_1^*$  est proportionnel à  $e^{-\gamma_b T}$ ; si la durée de vie de l'état excité est très nettement plus faible que celle du niveau fondamental, nous pourrions, en choisissant le temps  $T$  de la zone noire centrale suffisamment long, éliminer le système de franges correspondant à  $\tilde{b}_1 \tilde{b}_1^*$ ; seul subsistera le système de franges déplacé vers le bleu par l'effet de recul.

Ceci peut avoir d'importantes conséquences pour les étalons de fréquence dans le visible. On sait qu'en spectroscopie de saturation usuelle, (à une zone), il existe deux pics de recul (tout comme en franges de Ramsey), en général non résolus, également proportionnels à  $\frac{1}{\gamma_a}$  et  $\frac{1}{\gamma_b}$  [48]. Ceci produit, si  $\gamma_b \neq \gamma_a$ , une asymétrie de la forme de raie de saturation, nuisible pour l'exactitude et la reproductibilité de l'étalon de fréquence. Ces deux pics de recul induisent en outre des déplacements lumineux [49] qui tendent à les rapprocher l'un de l'autre lorsque l'intensité du laser augmente. Ceci a été prédit théoriquement dans la référence [48] et observé en franges de Ramsey sur le calcium [22]. L'avantage, ici, des quatre ondes progressives est double :

1) il peut être possible de supprimer un système de franges en choisissant  $T$  suffisamment long,

2) il n'existe aucun déplacement lumineux d'une composante de recul sur l'autre puisqu'à aucun moment le système ne voit simultanément les ondes (+) et (-).

• Le terme de phase  $e^{i(\varphi_4^- - \varphi_3^- + \varphi_2^+ - \varphi_1^+)}$  qui est un facteur devant les termes de franges de Ramsey est extrêmement important dans le domaine optique. Pour que les franges ne soient pas déplacées et maximales il faudra remplir la condition

$$\varphi_4^- - \varphi_3^- + \varphi_2^+ - \varphi_1^+ = 0 \quad (1.26)$$

à une fraction de frange d'interférence près : au moins  $\lambda/10$ .

Ceci signifie qu'il y aura intérêt à générer les quatre ondes progressives à partir du même faisceau laser de façon à annuler les fluctuations relatives de phase dues au laser (ou à la rigueur, à partir de lasers verrouillés en phase entre eux). De même, les fronts d'ondes dans chaque

zone d'interaction devront être de très bonne qualité, ce qui implique l'utilisation d'une optique très bien polie et originale, décrite dans la suite de ce travail. En particulier, pour des faisceaux gaussiens, on peut montrer que la phase vue par les molécules au cours de leur traversée d'un faisceau de rayon de courbure  $R$ , dépend du temps par :

$$\varphi = - \frac{k}{2R} (v_x t)^2 .$$

Si l'on veut éviter un phénomène analogue au passage adiabatique rapide dû à la dépendance linéaire de la fréquence instantanée ( $\dot{\varphi}$ ) en fonction du temps et qui conduit à une impulsion  $\pi$  dans chaque zone, il faudra que l'onde lumineuse soit plane au niveau des quatre zones d'interaction (c'est-à-dire à proximité immédiate du "waist" du faisceau gaussien).

Nous verrons dans les Chapitres 2 et 4 de ce travail, que l'utilisation de coins de cube rétroréfecteurs de haute qualité optique permet de remplir la condition (1.26) avec une très bonne précision, dans le domaine infrarouge.

• Dans le cas simplifié où l'on néglige la relaxation, l'effet de recul ( $\delta = 0$ ), et où l'on se place au voisinage de la résonance ( $\Omega_3 \sim 0$ ), les formules (1.24) et (1.25) se simplifient remarquablement lorsqu'on effectue une impulsion  $\pi/2$  dans chaque zone et lorsqu'on suppose la condition de phase (1.26) vérifiée. En effet, dans ces conditions :

$$A_1 = A_2 = A_3 = A_4 = D_1 = D_2 = D_3 = D_4 = \frac{1}{\sqrt{2}} .$$

$$B_1 = B_2 = B_3 = B_4 = C_1 = C_2 = C_3 = C_4 = \frac{i}{\sqrt{2}}$$

$$\text{et } \tilde{b}_{-1} \tilde{b}_{-1}^* = \tilde{b}_1 \tilde{b}_1^* \approx \frac{1}{4} - \frac{1}{8} \cos 2\Delta T \quad \text{avec} \quad \Delta = \gamma\omega - \omega_0$$

et par conséquent, la population totale dans le niveau supérieur après les quatre interactions s'écrit :

$$bb^* = \tilde{b}_1 \tilde{b}_1^* + \tilde{b}_{-1} \tilde{b}_{-1}^* = \frac{1}{2} - \frac{1}{4} \cos 2\Delta T \quad (1.27)$$

Ceci signifie qu'à l'optimum d'intensité (4 impulsions  $\pi/2$ ) le contraste des franges doit être voisin de 2/3.

En comparant cependant (1.27) à la formule simplifiée (1.20 bis)  $bb^* = \frac{1}{2}(1 + \cos \Delta T)$  pour les franges de Ramsey usuelles à deux zones, nous constatons que la suppression de l'effet Doppler grâce aux deux paires d'ondes de sens opposés se fait au prix d'une diminution d'un facteur 2 de l'intensité des franges.

• La figure 1.3.7 présente l'allure des signaux obtenus à partir des formules (1.24) et (1.25) après intégration numérique sur une distribution de vitesses  $v_z$ . On a tout d'abord négligé la relaxation ( $\gamma_a = \gamma_b = 0$ ), l'effet de recul et l'effet Doppler du second ordre ; la condition de phase (1.26) est supposée satisfaite. Pour simplifier, les quatre champs ont la même pulsation de Rabi  $\Omega_{ba}$ , choisie de façon à rendre maximum le signal de franges. La distribution des vitesses  $v_z$  a été supposée rectangulaire, conduisant à une largeur comparable à l'élargissement par temps de transit dans le cas de la fig. 1.3.7 (a) et à une largeur très supérieure à l'élargissement par temps de transit dans le cas de la fig. 1.3.7 (b); dans ce dernier cas, le trou de saturation apparaît nettement. Il est élargi principalement par temps de transit fini et par la saturation au voisinage de l'impulsion  $\pi/2$ . Pour la figure 1.3.7 (a), nous avons choisi  $T = 5,25 \tau$ ; pour la figure 1.3.7 (b)  $T = 8,78 \tau$ . (Ces situations correspondent aux conditions expérimentales du Chapitre 4).

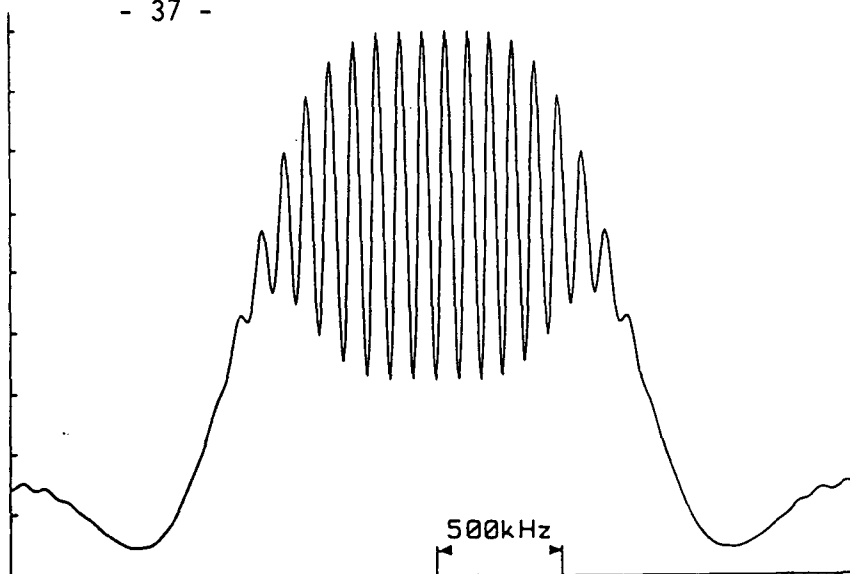
L'optimum de champ pour les franges de Ramsey de la figure 1.3.7 (a) est en fait obtenu pour une valeur  $2 \Omega_{ba} \tau = 1,8$  légèrement supérieure à  $\frac{\pi}{2} = 1,57$  à cause de la dépendance en  $v_z$  de  $\Omega$  par l'intermédiaire de  $\Omega_3$  dans les formules (1.24) et (1.25).

Enfin, la remontée sur les ailes de l'enveloppe du signal élargi par effet Doppler (Fig. 1.3.7(a)) provient du choix de créneaux de largeur  $\tau$  pour les quatre zones, dont la transformée de Fourier temporelle est proportionnelle à  $\sin \frac{\Delta \tau}{2} / \frac{\Delta \tau}{2}$ .

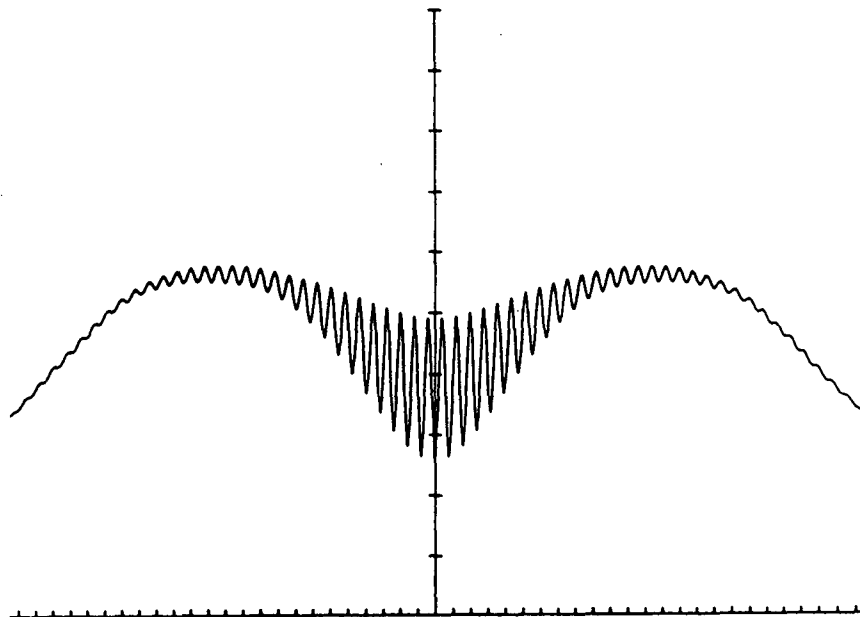
En champ faible, l'enveloppe du signal est en  $(\sin \frac{\Delta \tau}{2} / \frac{\Delta \tau}{2})^2$ . Cet effet de remontée sur les ailes disparaît lorsque le profil de champ vu par les molécules est gaussien, puisque la transformée de Fourier d'une gaussienne est encore une gaussienne. La figure 1.3.7 (c) présente le système de franges obtenu à l'aide du programme SHAPE (Appendice B et [29,40])

FIGURE 1.3.7 - Franges de Ramsey avec quatre ondes progressives

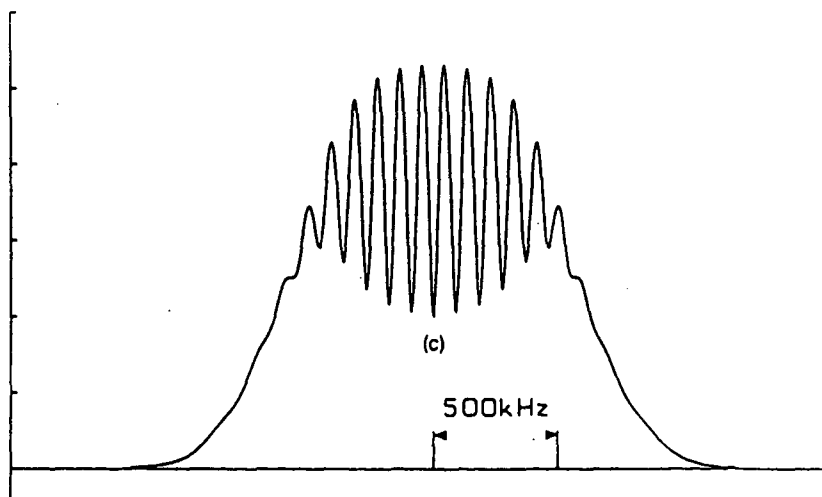
- (a) Calculées à partir des formules (1.24) et (1.25) sans effet de de recul ni relaxation. On a choisi une distribution des vitesses  $v_z$  conduisant à une largeur Doppler comparable à l'élargissement par temps de vol.  $T/\tau = 5,25$  et  $\Omega\tau = 1,8$ .



- (b) Mêmes conditions que (a). Mais l'élargissement Doppler est très supérieur à l'élargissement par temps de vol et  $T/\tau = 8,78$ .



- (c) Calculées numériquement avec quatre zones de profil gaussien séparées de 5 mm, de rayon  $w_0 = 0,5$  mm. L'élargissement Doppler dû à la distribution des vitesses  $v_z$  est comparable à l'élargissement par temps de vol (programme SHAPE).





lorsque les quatre zones ont un profil gaussien de demi-largeur  $\tau$  à  $1/e$ .

#### 1.3.4.3 Représentation géométrique des franges de Ramsey à l'aide de spins fictifs

Ainsi que nous l'avons défini au paragraphe 1.3.2, à chaque spineur  $\begin{pmatrix} b_{m \pm 1} \\ a_m \end{pmatrix}$ , nous associons un vecteur  $\vec{R}_m^\pm$  dont les composantes sont données par la formule (1.16) et qui satisfait l'équation d'évolution (1.17). Rappelons que le signe  $\pm$  correspond au sens de propagation des faisceaux lasers. Si l'effet de recul est négligé, nous pouvons considérer les deux vecteurs  $\vec{R}^\pm$  définis par  $\vec{R}^\pm = \sum_m \vec{R}_m^\pm$ .

A un instant donné, seul l'un des vecteurs  $\vec{R}^+$  ou  $\vec{R}^-$  est couplé aux champs, suivant que les ondes présentes sur le système sont les ondes (+) ou (-).

L'équation d'évolution  $\frac{d\vec{R}^\pm}{dt} = \vec{R}^\pm \wedge \vec{\Omega}^\pm$  n'est valable que successivement pour les vecteurs  $\vec{R}^+$  et  $\vec{R}^-$ , et non simultanément.  $\vec{R}^+$  et  $\vec{R}^-$  ne sont couplés que par leur troisième composante (la différence de population  $\tilde{b} \tilde{b}^* - \tilde{a} \tilde{a}^*$ ), qui leur est commune.

Nous négligeons en outre la relaxation :  $\gamma_a = \gamma_b = 0$ .

A partir des équations (1.5), on vérifie simplement que les deux composantes horizontales de  $\vec{R}^+$ ,  $R_1^+$  et  $R_2^+$  sont indépendantes de  $\Omega^-$ , tandis que les deux composantes horizontales de  $\vec{R}^-$ ,  $R_1^-$  et  $R_2^-$  sont indépendantes de  $\Omega^+$ .

Au cours de la première moitié du processus de franges de Ramsey décrit sur la figure 1.3.6 seul  $\vec{R}^+$  est couplé aux champs (+).  $\vec{R}^-$  n'a pas de composantes horizontales et se réduit à la troisième composante de  $\vec{R}^+$  :  $R_3$ .

Au cours de la seconde moitié du processus, seul  $\vec{R}^-$  est couplé aux champs (-) et est représenté sur la figure.

Les deux composantes horizontales de  $\vec{R}^+$  précèdent librement et indépendamment, et ne sont pas représentées.

Pour simplifier, nous supposons que nous avons quatre impulsions  $\pi/2$ , à résonance ( $\Delta = 0$ ) dans chacune des zones. La première phase est identique

au processus de franges de Ramsey à deux zones décrit au paragraphe 1.3.3;  $R^+$  subit une première impulsion  $\pi/2$ , accumule un déphasage Doppler  $-kv_z T$  pendant la traversée de la première zone noire de durée  $T$  (rotation d'un angle  $+kv_z T$  dans le plan horizontal). Une seconde impulsion  $\pi/2$  fournit un vecteur dont la troisième composante ( $R_3 = \cos kv_z T$ ) est modulée en amplitude par le déphasage Doppler. (La première composante de  $R^+$ ,  $R_1^+ = \sin kv_z T$  va désormais précesser librement et nous ne nous y intéressons plus).

La différence de population  $R_3 = R_3^- = R_3^+$  sert maintenant de condition initiale pour le vecteur  $\vec{R}^-$  qui est le seul représenté sur la partie gauche de la figure 1.3.6. Le vecteur  $\vec{R}^-$  subit une première impulsion  $\pi/2$  pour s'écrire  $\begin{pmatrix} 0 \\ \cos kv_z T \\ 0 \end{pmatrix}$  avant toute précession. Il est alors commode de décomposer ce vecteur modulé en amplitude en deux vecteurs tournant  $\vec{R}_{avance}^-$  et  $\vec{R}_{retard}^-$ , d'amplitudes constantes, tout comme l'on décompose une onde polarisée linéairement en la somme d'une onde circulaire droite et d'une onde circulaire gauche :

$$\vec{R}^- = \begin{pmatrix} 0 \\ \cos kv_z T \\ 0 \end{pmatrix} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \sin kv_z T \\ \cos kv_z T \\ 0 \end{pmatrix} + \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \sin(-kv_z T) \\ \cos(-kv_z T) \\ 0 \end{pmatrix}$$

$$\vec{R}^- = \vec{R}_{avance}^- + \vec{R}_{retard}^-$$

Au cours de la seconde précession dans la dernière zone noire de durée  $T$ , le déphasage Doppler s'écrit cette fois :  $+kv_z T$  ( $k \rightarrow -k$ ), si bien que  $\vec{R}_{avance}^-$  va doubler son déphasage Doppler, alors que  $\vec{R}_{retard}^-$  va combler son retard pour s'écrire  $\frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}$  à la fin de la précession.

Nous montrerons plus loin que  $\vec{R}_{avance}^-$  correspond à l'écho de photons stimulé vers l'arrière (qui n'existe pas dans les gaz) alors que  $\vec{R}_{retard}^-$  est le signal de franges de Ramsey. Une deuxième impulsion  $\pi/2$  donnera une différence de population  $R_3 = -\frac{1}{2}$ , quelle que soit la vitesse  $v_z$ ; tous les dipôles se sont retrouvés en phase à la fin de la seconde

zone noire de durée  $T$ . Pour simplifier la discussion, nous n'avons tracé les vecteurs  $\vec{R}^+$  et  $\vec{R}^-$  qu'à résonance :  $\gamma\omega - \omega_0 = \Delta = 0$ . On trouvera sur la figure 1.3.6 la même discussion lorsque le désaccord  $\Delta$  est non nul. Le déphasage s'écrit maintenant  $\Delta - kv_z T$  dans la première zone de précession et  $\Delta + kv_z T$  dans la seconde, si bien que  $\vec{R}_{\text{retard}}^-$  s'écrit

finalement  $\frac{1}{2} \begin{pmatrix} \sin(2\Delta T) \\ 0 \\ -\cos(2\Delta T) \end{pmatrix}$  et présente bien une dépendance oscillatoire en fonction de l'écart à résonance.  $\vec{R}_{\text{avance}}^-$ , de son côté voit sa dépendance en  $\Delta$  s'annuler et s'écrit  $\frac{1}{2} \begin{pmatrix} \sin(2kv_z T) \\ 0 \\ -\cos(2kv_z T) \end{pmatrix}$ .

Notons que le signal de franges de Ramsey, proportionnel à la population du niveau supérieur, s'écrit  $bb^* = \frac{1}{2}(1 - \frac{1}{2} \cos 2\Delta T)$  et se présente bien comme une diminution de la population  $bb^*$  (signe -). Nous retrouvons donc géométriquement la formule simplifiée (1.27).

Le processus de franges de Ramsey est ainsi bien différent du processus d'écho de photons habituel [50-52], pour lequel :

- 1) Il n'y a pas renversement du déphasage, comme ici, entre les deux zones de précession.
- 2) L'effet des deux zones centrales est une impulsion  $\pi$  qui effectue une symétrie par rapport au plan  $(\hat{1}, \hat{3})$ , ce qui est très différent de ce qui arrive en franges de Ramsey puisque  $\vec{R}^+$  avant les deux zones centrales et  $\vec{R}^-$  juste après les deux zones centrales sont colinéaires.

Si l'on appelle écho de photon tout mécanisme dans lequel il y a création d'une polarisation macroscopique et réémission de lumière après un certain nombre d'impulsions lumineuses, alors les franges de Ramsey peuvent être considérées comme un écho de photon stimulé vers l'arrière. En effet, le rôle de la dernière zone n'est pas indispensable. Elle permet simplement de traduire la modulation en amplitude du signal d'écho en fonction de la fréquence, en changement de population du niveau supérieur. (Détection homodyne). Cette comparaison avec les échos de photons sera poursuivie au paragraphe 1.6.2.

## 1.4 CAS D'UNE (OU PLUSIEURS) ONDES STATIONNAIRES

Comme il est rappelé sur la figure présentant les états d'énergie-impulsion (Fig.1.2.1) ou dans l'équation(1.5), si les ondes (+) et (-) sont simultanément présentes sur le système à deux niveaux, le nombre d'états d'énergie-impulsion (et le nombre d'équations couplées) est infini. Le système d'équations couplées n'est pas soluble analytiquement. Comme ces équations ont la même structure que les équations d'évolution dans un laser en onde stationnaire, de nombreuses méthodes (développements en perturbations, fractions continues, méthodes numériques) ont été développées pour résoudre ce problème.

Nous nous limiterons ici à montrer que, moyennant une hypothèse supplémentaire, il est encore possible d'utiliser un formalisme en matrices (2 x 2) pour calculer la réponse du système à deux niveaux soumis à une ou plusieurs ondes stationnaires. Pour éviter que les calculs ne soient excessivement lourds, nous négligerons l'effet de recul dans ce paragraphe et nous considérerons le vecteur à deux composantes

$$\begin{pmatrix} b(t) \\ a(t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \langle b | \Psi(\vec{r}, t) \rangle \\ \langle a | \Psi(\vec{r}, t) \rangle \end{pmatrix} \quad (1.28)$$

obtenu en sommant sur  $m$  toutes les composantes sur les états d'énergie-impulsion  $a_m(\vec{r}, t)$  et  $b_m(\vec{r}, t)$ . (paragraphe 1.2.2).

La méthode diagrammatique en champ fort du paragraphe 1.6 permettra d'introduire à nouveau l'effet de recul.

### 1.4.1 CAS D'UNE ONDE STATIONNAIRE

Nous supposons que l'onde stationnaire est formée de deux ondes monochromatiques de même fréquence, de vecteurs d'ondes opposés, d'intensités égales, dont les fronts d'ondes sont parfaitement adaptés, et se propageant dans les directions  $\pm z$  :

$$E^+ = E^- = E, \quad \varphi^+(\vec{r}) = -\varphi^-(\vec{r}) = -\varphi(\vec{r}), \quad U^+(\vec{r}) = U^-(\vec{r}) = U(\vec{r})$$

Le champ électrique  $\mathcal{E}_L$  (choisi scalaire pour simplifier les notations) s'écrit dans le repère du laboratoire :

$$\mathcal{E}_L = 2 E U(\vec{r}) \cos(k.z + \varphi(\vec{r})) \cos \omega t \quad (1.29)$$

Comme précédemment, nous ignorons la dépendance en  $y$  de la fonction  $U$  qui traduit la géométrie des champs, et nous supposons  $U$  réelle et symétrique par rapport à  $x = 0$ . De même  $\varphi(\vec{r})$  sera supposée ne dépendre que de  $x$ .

Dans le repère de la molécule se déplaçant à la vitesse  $\vec{v}$ ,  $\mathcal{E}$  s'écrit

$$\mathcal{E} = 2EU(v_x t) \cos \left[ kz + kv_z t + \varphi(v_x t) \right] \cos \gamma \omega t \quad (1.30)$$

Dans l'approximation dipolaire électrique, l'équation de Schrödinger peut s'écrire sur la base des matrices de Pauli  $\sigma_0 = I, \sigma_1, \sigma_2, \sigma_3$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} b(t) \\ a(t) \end{pmatrix} = & \left( -i \frac{E_a + E_b}{2\hbar} - \frac{\gamma_{ab}}{2} \right) \sigma_0 - \left( i \frac{\omega_0}{2} + \frac{\gamma_b - \gamma_a}{2} \right) \sigma_3 \\ & + i \frac{\mu E}{\hbar} U(v_x t) \begin{pmatrix} 0 & e^{-i\gamma \omega t} \cos(kz + kv_z t + \varphi) \\ e^{i\gamma \omega t} \cos(kz + kv_z t + \varphi) & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} b(t) \\ a(t) \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (1.31)$$

On a fait l'approximation des ondes tournantes et  $\gamma_{ab} = \frac{1}{2}(\gamma_a + \gamma_b)$ .

En passant dans le référentiel tournant à  $\omega$ , à l'aide de la transformation unitaire

$$A = e^{i\gamma \omega \sigma_3 t / 2} \quad \text{et} \quad \begin{pmatrix} \tilde{b}(t) \\ \tilde{a}(t) \end{pmatrix} = A \begin{pmatrix} b(t) \\ a(t) \end{pmatrix} \quad (1.32)$$

on obtient :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} \tilde{b}(t) \\ \tilde{a}(t) \end{pmatrix} = & \left\{ \left( -\frac{\gamma_{ab}}{2} - i \frac{E_a + E_b}{2\hbar} \right) \sigma_0 + \frac{i}{2} \left( \gamma \omega - \omega_0 + i \left( \frac{\gamma_b - \gamma_a}{2} \right) \right) \sigma_3 \right. \\ & \left. + i \frac{\mu E}{\hbar} \sigma_1 U(v_x t) \cos [kz + kv_z t + \varphi(v_x t)] \right\} \begin{pmatrix} \tilde{b} \\ \tilde{a} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (1.33)$$

qui s'écrit, sous forme condensée :

$$\frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} \tilde{b}(t) \\ \tilde{a}(t) \end{pmatrix} = \frac{i}{2} [\Omega_0 \sigma_0 + \vec{\Omega} \cdot \vec{\sigma}] \begin{pmatrix} \tilde{b}(t) \\ \tilde{a}(t) \end{pmatrix} \quad (1.34)$$

avec :

$$\vec{\Omega} = \begin{cases} 4 \Omega_{ba} U(v_x t) \cos(kz + kv_z t + \varphi(v_x t)) \\ 0 \\ \gamma \omega - \omega_0 + i(\gamma_b - \gamma_a)/2 \end{cases}$$

$$\Omega_0 = - \frac{(E_a + E_b)}{\hbar} + i \gamma_{ab}$$

Le problème qui se pose avec cette équation (1.34) est que l'hamiltonien ne commute pas avec lui-même  $\forall t$  car  $\sigma_1$  et  $\sigma_3$  ne commutent pas. Il serait donc incorrect d'intégrer telle quelle l'équation (1.34).

Nous sommes alors amenés à faire en sorte que  $\vec{\Omega}$  n'ait jamais qu'une composante non nulle à la fois; ceci revient à dire que nous choisissons  $\Omega_3 = 0$  dans les zones où le champ  $U(v_x t)$  est non nul. Le traitement qui suit n'est alors valable qu'au voisinage de la résonance  $(\omega - \omega_0)\tau \ll 1$  où  $\tau$  est un temps caractéristique de traversée du faisceau, ou encore, lorsque  $\tau$  devient très petit.

La dépendance en  $\sigma_3$  ayant ainsi été négligée dans la zone de champ, l'équation (1.34) s'intègre entre  $t_0$  et  $t$ , où le champ est non nul.

$$\begin{pmatrix} \tilde{b}(t) \\ \tilde{a}(t) \end{pmatrix} = \exp\left[\frac{i}{2} \Omega_0 \sigma_0 (t - t_0)\right] \exp\left[\frac{i}{2} \Theta \sigma_1\right] \begin{pmatrix} \tilde{b}(t_0) \\ \tilde{a}(t_0) \end{pmatrix} \quad (1.35)$$

avec :

$$\Theta = 2 \frac{\mu E}{\hbar} \int_{t_0}^t \cos[kz + kv_z t' + \varphi(t')] U(t') dt' \quad (1.36)^*$$

soit :

$$\begin{pmatrix} \tilde{b}(t) \\ \tilde{a}(t) \end{pmatrix} = \exp\left[\frac{i}{2} \Omega_0 (t - t_0)\right] \left( \cos \frac{\Theta}{2} + i \sin \frac{\Theta}{2} \sigma_1 \right) \begin{pmatrix} \tilde{b}(t_0) \\ \tilde{a}(t_0) \end{pmatrix} \quad (1.37)$$

---

\* Pour simplifier les notations la dépendance en  $v_x$  des fonctions  $\varphi$  et  $U$  a été omise dans la suite du calcul.

où l'on a utilisé le développement habituel

$$\exp\left(\frac{i}{2} \Theta \sigma_1\right) = \cos\left(\frac{\Theta}{2}\right) + i \sin\left(\frac{\Theta}{2}\right) \sigma_1 \quad (1.38)$$

On peut alors encore une fois définir une matrice de transfert entre l'instant  $t_0$  d'entrée dans la zone de champ et l'instant  $t$  de sortie par :

$$\begin{pmatrix} \tilde{b}(t) \\ \tilde{a}(t) \end{pmatrix} = \exp \frac{i}{2} \Omega_0 (t - t_0) \begin{pmatrix} \cos \frac{\Theta}{2} & i \sin \frac{\Theta}{2} \\ i \sin \frac{\Theta}{2} & \cos \frac{\Theta}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \tilde{b}(t_0) \\ \tilde{a}(t_0) \end{pmatrix} \quad (1.39)$$

A l'extérieur de l'onde stationnaire, le traitement est trivial puisqu'alors seul le coefficient de  $\sigma_3$  est non nul. Nous avons alors une matrice de précession :

$$\exp \frac{i}{2} \Omega_0 T \begin{pmatrix} e^{i\Omega_3 T/2} & 0 \\ 0 & e^{-i\Omega_3 T/2} \end{pmatrix} \quad (1.40)$$

pendant l'espace noir de durée  $T$ .

#### 1.4.1.1 Calcul de l'intégrale (1.36)

Le problème est donc ramené au calcul de  $\Theta$  qui est donné par la formule (1.36)

$$\Theta = 4 \Omega_{ba} \int_{t_0}^t \cos [kz + kv_z t' + \varphi(t')] U(t') dt' \quad (1.41)$$

où  $t_0$  est l'instant d'entrée dans l'onde stationnaire et  $t$  l'instant de sortie.

Si l'onde stationnaire a une structure géométrique en  $x$  symétrique autour d'une valeur  $x_1$  ( $x$  est la direction de traversée des faisceaux), la fonction  $U(t')$  aura une structure temporelle symétrique autour de  $t = t_1$ . On pose alors :

$$t'' = t' - t_1$$

$$\Theta = 4 \Omega_{ba} \int_{t_0 - t_1}^{t - t_1} \cos [kz + kv_z t_1 + kv_z t'' + \varphi(t'' + t_1)] U(t'' + t_1) dt'' \quad (1.42)$$

Puisque maintenant les bornes de l'intégrale sont symétriques par rapport à  $t_1$  nous pouvons écrire :

$$\begin{aligned} \Theta &= 4 \Omega_{ba} \left[ \cos(kz + kv_z t_1) \int_{t_0 - t_1}^{t - t_1} \cos[kv_z t'' + \varphi(t'' + t_1)] U(t'' + t_1) dt'' \right. \\ &\quad \left. - \sin(kz + kv_z t_1) \int_{t_0 - t_1}^{t - t_1} U(t'' + t_1) \sin[kv_z t'' + \varphi(t'' + t_1)] dt'' \right] \\ &\approx 4 \Omega_{ba} \left[ \cos(kz + kv_z t_1) \int_{-\infty}^{+\infty} U(t'' + t_1) \cos[kv_z t'' + \varphi(t'' + t_1)] dt'' \right. \\ &\quad \left. - \sin(kz + kv_z t_1) \int_{-\infty}^{+\infty} U(t'' + t_1) \sin[kv_z t'' + \varphi(t'' + t_1)] dt'' \right] \end{aligned}$$

$I_1$   
 $I_2$

Si les ondes sont planes (mais de profil quelconque) alors  $\varphi = \text{cte}$  et sort des intégrales et l'intégrale ( $I_2$ ) est nulle par raison de parité :

$$\Theta = 4 \Omega_{ba} \cos(kz + kv_z t_1 + \varphi) \int_{-\infty}^{+\infty} U(t + t_1) \cos(kv_z t) dt \quad (1.43)$$

$$\Theta = 4 \Omega_{ba} \cos(kz + kv_z t_1 + \varphi) \tilde{U}(kv_z) \quad (1.44)$$

avec :

$$\tilde{U}(kv_z) = \int_{-\infty}^{+\infty} U(t + t_1) \cos(kv_z t) dt \quad (1.45)$$

Ainsi  $\tilde{U}(kv_z)$  n'est autre que la transformée de Fourier de la structure temporelle centrée  $U(t + t_1)$  du champ vu par les molécules au cours de leur traversée du faisceau. Elle vaut, par exemple,

$$\frac{2 \sin(kv_z \tau/2)}{kv_z} \quad (1.46)$$

pour un créneau de largeur  $\tau$  et d'amplitude 1,



Si bien que :

$$\Theta = 8 \Omega_{ba} \cos(kz + kv_z t_1 + \varphi) \frac{\sin kv_z \tau/2}{kv_z} \quad (1.47)$$

L'intégrale (1.45) se calcule aussi très simplement pour une gaussienne de demi-largeur  $\tau$  à  $1/e$ ,  $\exp -(\frac{t}{\tau})^2$ , et l'on trouve :

$$\Theta = 4 \sqrt{\pi} \Omega_{ba} \tau \cos(kz + kv_z t_1 + \varphi) \cdot e^{-(kv_z \tau/2)^2} \quad (1.48)$$

#### 1.4.1.2 Oscillations de Rabi en ondes stationnaires [181,182,56,25,27,43]

Dans le cas d'un créneau de champ de largeur  $\tau$  centré à  $t_1 = 0$ , et en négligeant la relaxation, la formule (1.39) donne immédiatement la probabilité d'excitation du niveau supérieur de la transition  $b$ , à partir d'une condition initiale où toutes les molécules sont dans le niveau fondamental  $a$  :

$$\tilde{b}b^* = \sin^2 \frac{\Theta}{2}$$

où  $\Theta$  est donné par (1.47) avec  $t_1 = 0$

$$\begin{aligned} \tilde{b}b^* &= \sin^2 \left[ 4 \Omega_{ba} \cos(kz + \varphi) \frac{\sin(kv_z \tau/2)}{kv_z} \right] \\ \tilde{b}b^* &= \frac{1}{2} \left\{ 1 - \cos \left[ 4 \Omega_{ba} \cos(kz + \varphi) \frac{\sin(kv_z \tau/2)}{kv_z/2} \right] \right\} \end{aligned} \quad (1.49)$$

formule bien différente du résultat obtenu avec une onde progressive.

Si nous posons :

$$\alpha = 4 \Omega_{ba} \frac{\sin(kv_z \tau/2)}{kv_z/2}$$

nous pouvons développer le cosinus en fonction de Bessel pour obtenir :

$$\tilde{b}b^* = \frac{1}{2} \left\{ 1 - J_0(\alpha) - 2 \sum_{j=1}^{\infty} (-1)^j J_{2j}(\alpha) \cos[2j(kz + \varphi)] \right\} \quad (1.50)$$

Cette formule met bien en évidence les modulations spatiales de la population à tous les harmoniques pairs de  $kz$  à côté d'un terme constant qui en champ faible est le double de celui obtenu avec une seule onde progressive. Si l'on effectue l'intégration sur  $z$ , les cosinus rapidement oscillants disparaissent et il ne reste que :

$$\tilde{b}\tilde{b}^* = \frac{1}{2} \left\{ 1 - J_0(\alpha) \right\} \quad (1.51)$$

#### 1.4.2 CAS DE DEUX ONDES STATIONNAIRES : FRANGES DE RAMSEY A DEUX ZONES

Ayant calculé les matrices de transfert pour les zones avec champ (1.39) et pour les zones sans champ, (1.40), il est facile de traiter le cas de plusieurs ondes stationnaires successives.

Pour deux ondes stationnaires (1) et (2) de même géométrie, séparées par un temps  $T$ , nous avons :

$$\begin{pmatrix} \tilde{b} \\ \tilde{a} \end{pmatrix} = e^{-\gamma_{ba}T/2} \begin{pmatrix} \cos \Theta_2/2 & i \sin \Theta_2/2 \\ i \sin \Theta_2/2 & \cos \Theta_2/2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{i\Omega_3T/2} & 0 \\ 0 & e^{-i\Omega_3T/2} \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} \cos \Theta_1/2 & i \sin \Theta_1/2 \\ i \sin \Theta_1/2 & \cos \Theta_1/2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} \quad (1.52)$$

d'où :

$$\tilde{b} = e^{-\gamma_{ba}T/2} \left[ \cos \Theta_2/2 e^{i\Omega_3T/2} i \sin \Theta_1/2 + i \sin \Theta_2/2 e^{-i\Omega_3T/2} \cos \Theta_1/2 \right]$$

et le signal de franges correspondant à la partie oscillante de la population du niveau supérieur s'écrit :

$$\tilde{b} \tilde{b}^*_{osc} = \frac{1}{2} e^{-\gamma_{ba}T} \cdot \cos \Omega'_0 T \sin \Theta_1 \sin \Theta_2 \quad (1.53)$$

où :

$$\Omega'_0 = \gamma\omega - \omega_0$$

Il existera également dans  $\tilde{b} \tilde{b}^*$  des termes constants qui constitueront un fond. Il est clair que  $\tilde{b} \tilde{b}^*_{osc}$  est une fonction oscillante, de période  $\frac{1}{T} = \frac{v_z}{D}$  où  $D$  est la distance entre les deux zones.

Cependant  $\sin \Theta_1$  et  $\sin \Theta_2$  sont encore des fonctions de  $z$  et  $kv_z$ , formule (1.47) et il reste toujours à faire une intégration sur ces deux variables. Si nous choisissons l'origine des temps au milieu de la zone noire centrale, les champs (1) et (2) seront centrés à  $+ T/2$  et  $- T/2$  de sorte que :

$$\Theta_1 = 4 \Omega_{ba} \cos(kz - \frac{kv_z T}{2} + \varphi_1) \tilde{U}(kv_z) \quad (1.54)$$

et

$$\Theta_2 = 4 \Omega_{ba} \cos(kz + \frac{kv_z T}{2} + \varphi_2) \tilde{U}(kv_z) \quad (1.55)$$

Les développements de Bessel de  $\sin \Theta_1$  et  $\sin \Theta_2$  s'écrivent :

$$\sin \Theta_1 = 2 \sum_{j=0}^{\infty} (-1)^j J_{2j+1}(4 \Omega_{ba} \tilde{U}(kv_z)) \cos \left\{ (2j+1) \left( kz - \frac{kv_z T}{2} + \varphi_1 \right) \right\} \quad (1.56)$$

et

$$\sin \Theta_2 = 2 \sum_{j=0}^{\infty} (-1)^j J_{2j+1}(4 \Omega_{ba} \tilde{U}(kv_z)) \cos \left\{ (2j+1) \left( kz + \frac{kv_z T}{2} + \varphi_2 \right) \right\} \quad (1.57)$$

Le produit  $\sin \Theta_1 \sin \Theta_2$  fait donc intervenir des produits tels que:

$$\cos(kz - \frac{kv_z T}{2} + \varphi_1) \cos(kz + \frac{kv_z T}{2} + \varphi_2) = \frac{1}{2} \left[ \cos(2kz + \varphi_1 + \varphi_2) + \cos(kv_z T + \varphi_2 - \varphi_1) \right]$$

L'intégration sur la variable  $z$ , sur une longueur grande devant la longueur d'onde optique, donnera une valeur moyenne nulle pour le terme en  $\cos(2kz + \varphi_1 + \varphi_2)$ . De même l'intégration sur la vitesse  $v_z$ , sur une distribution de vitesses  $kv_z$  grande devant la période des franges ( $\frac{1}{T}$ ) moyennera le terme en  $\cos(kv_z T + \varphi_2 - \varphi_1)$  à zéro. Plus généralement, le terme générique du produit  $\sin \Theta_1 \sin \Theta_2$  est proportionnel à :

$$\cos(2j+1)(kz - \frac{kv_z T}{2} + \varphi_1) \cos(2j'+1)(kz + \frac{kv_z T}{2} + \varphi_2) \quad (1.58)$$

et vaut :

$$\frac{1}{2} \left[ \cos \left[ kz(2j+1+2j'+1) + 2(j'-j)\frac{kv_z T}{2} + (2j'+1)\varphi_2 + (2j+1)\varphi_1 \right] \right. \\ \left. + \cos \left[ 2(j-j')kz - (2j+1+2j'+1)\frac{kv_z T}{2} + (2j+1)\varphi_1 - (2j'+1)\varphi_2 \right] \right]$$

La moyenne sur  $z$  annulera le premier terme  $\forall j$  et  $j'$ , et le second terme si  $j \neq j'$ . Si  $j = j'$  le second terme n'aura plus de dépendance spatiale, mais sera moyenné à zéro par l'intégration sur les vitesses  $v_z$ . Cependant, si la distribution des vitesses  $kv_z$  est elle aussi modulée avec la période  $\frac{1}{T}$ , ce deuxième terme pourra donner une contribution non nulle. Ceci est le fondement de la méthode d'obtention des franges de Ramsey dans le domaine optique proposée par G. KRAMER [45]. Il effectue une sélection mécanique des vitesses  $v_z$ , à l'aide d'un réseau de trous ou de fentes, de largeur  $\lambda/2$  et de période  $\lambda$ . ( $\lambda$  étant la longueur d'onde optique).

#### 1.4.3 CAS DE TROIS ONDES STATIONNAIRES

Au lieu d'un réseau mécanique de sélection des vitesses il est tentant d'utiliser un réseau optique sous la forme d'une troisième onde stationnaire. C'est le principe de la méthode soviétique d'obtention de franges de Ramsey optiques [17]. La séquence de matrices d'évolution du spineur  $\begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$  est dans ce cas :

$$\begin{pmatrix} \tilde{b} \\ \tilde{a} \end{pmatrix} = e^{-\gamma_{ba}T} \begin{pmatrix} \cos \frac{\Theta_3}{2} & i \sin \frac{\Theta_3}{2} \\ i \sin \frac{\Theta_3}{2} & \cos \frac{\Theta_3}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{i\Omega_3 T/2} & 0 \\ 0 & e^{-i\Omega_3 T/2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \frac{\Theta_2}{2} & i \sin \frac{\Theta_2}{2} \\ i \sin \frac{\Theta_2}{2} & \cos \frac{\Theta_2}{2} \end{pmatrix} \\ \begin{pmatrix} e^{i\Omega_3 T/2} & 0 \\ 0 & e^{-i\Omega_3 T/2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \frac{\Theta_1}{2} & i \sin \frac{\Theta_1}{2} \\ i \sin \frac{\Theta_1}{2} & \cos \frac{\Theta_1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} \quad (1.59)$$

d'où l'on tire très facilement :

$$\tilde{b} = i \cos \frac{\Theta_3}{2} \cos \frac{\Theta_2}{2} \sin \frac{\Theta_1}{2} e^{i\Omega_3 T} + i \sin \frac{\Theta_3}{2} \cos \frac{\Theta_2}{2} \cos \frac{\Theta_1}{2} e^{-i\Omega_3 T} \\ + i \cos \frac{\Theta_3}{2} \sin \frac{\Theta_2}{2} \cos \frac{\Theta_1}{2} - i \sin \frac{\Theta_3}{2} \sin \frac{\Theta_2}{2} \sin \frac{\Theta_1}{2} \quad (1.60)$$

Rappelons que  $\Omega_3 = \gamma\omega - \omega_0 + i \frac{(\gamma_b - \gamma_a)}{2} = \Omega'_0 + i \frac{(\gamma_b - \gamma_a)}{2}$ . (1.61)

Lorsque l'on calcule la population  $\tilde{b} \tilde{b}^*$  du niveau supérieur de la transition, il apparait des termes en  $\cos 2 \Omega'_0 T$ ,  $\cos \Omega'_0 T$  et des termes indépendants de  $\Omega'_0$  :

$$\begin{aligned} \tilde{b} \tilde{b}^* = & \frac{1}{4} e^{-2 \gamma_{ba} T} \cos 2 \Omega'_0 T \sin \Theta_1 \sin \Theta_3 \cos \Theta_2 \\ & + e^{-2 \gamma_{ba} T} \cos \Omega'_0 T \left[ \sin \Theta_2 \cos \frac{(\Theta_1 + \Theta_3)}{2} \right] \left[ \sin \frac{\Theta_1}{2} \cos \frac{\Theta_3}{2} e^{-(\gamma_b - \gamma_a) T/2} \right. \\ & \left. + \cos \frac{\Theta_1}{2} \sin \frac{\Theta_3}{2} e^{+(\gamma_b - \gamma_a) T/2} \right] \end{aligned} \quad (1.62)$$

+ termes indépendants de  $\Omega'_0$ .

Le signal de franges de Ramsey à trois ondes stationnaires n'est que le premier terme de cette formule et nous allons montrer maintenant que le produit  $\sin \Theta_1 \sin \Theta_3 \cos \Theta_2$  ne se moyenne pas à zéro lors de l'intégration sur  $z$  et  $v_z$  alors que le coefficient du terme en  $\cos \Omega'_0 T$ , lui, a une valeur moyenne nulle. Si  $\gamma_a = \gamma_b$ , celui-ci s'écrit simplement  $\frac{1}{2} \sin \Theta_2 \sin (\Theta_1 + \Theta_3)$ .

Ayant choisi l'origine des temps à l'instant de traversée du milieu de la zone centrale, la formule (1.44) permet d'écrire :

$$\Theta_1 = 4 \Omega_{ba,1} \cos[kz + \varphi_1 - kv_z T] \tilde{U}(kv_z) \quad (1.63)$$

$$\Theta_2 = 4 \Omega_{ba,2} \cos[kz + \varphi_2] \tilde{U}(kv_z) \quad (1.64)$$

$$\Theta_3 = 4 \Omega_{ba,3} \cos[kz + \varphi_3 + kv_z T] \tilde{U}(kv_z) \quad (1.65)$$

Posons  $\alpha_i = 4 \Omega_{ba,i} \tilde{U}(kv_z)$   $i = 1, 2, 3$  et écrivons les développements de Bessel :

$$\sin \Theta_1 = 2 \sum_{j=0}^{\infty} (-1)^j J_{2j+1}(\alpha_1) \cos[(2j+1)(kz + \varphi_1 - kv_z T)] \quad (1.66)$$

$$\sin \Theta_3 = 2 \sum_{j'=0}^{\infty} (-1)^{j'} J_{2j'+1}(\alpha_3) \cos[(2j'+1)(kz + \varphi_3 + kv_z T)] \quad (1.67)$$

$$\cos \Theta_2 = J_0(\alpha_2) + 2 \sum_{j''=1}^{\infty} (-1)^{j''} J_{2j''}(\alpha_2) \cos[2j''(kz + \varphi_2)] \quad (1.68)$$

Dans le terme générique du produit  $\sin \theta_1 \sin \theta_3 \cos \theta_2$  :

$$(-1)^{j+j'+j''} J_{2j+1}(\alpha_1) J_{2j'+1}(\alpha_3) J_{2j''}(\alpha_2) \cos[2j+1)(kz + \varphi_1 - kv_z T)] \\ \cos[(2j'+1)(kz + \varphi_3 + kv_z T)] \cos[2j''(kz + \varphi_2)] \quad (1.69)$$

il apparaît immédiatement en contractant les deux premiers cosinus, que  $j'$  doit être égal à  $j$  pour que l'intégration sur  $v_z$  soit non nulle. Il reste alors un facteur proportionnel à :

$$\cos[2(j+1)kz + (2j+1)(\varphi_1 + \varphi_3)] \cos 2j''(kz + \varphi_2)$$

qui, cette fois, indique que  $j''$  doit être égal à  $j+1$  pour que l'intégration sur  $z$  soit non nulle.

L'on obtient finalement :

$$\widetilde{bb}_{osc}^* = -\frac{1}{2} e^{-2\gamma_{ba} T} \cos 2\Omega_0' T \sum_0^{\infty} J_{2p+1}(\alpha_1) J_{2p+1}(\alpha_3) J_{2(2p+1)}(\alpha_2) \cos[(2p+1)(\varphi_1 + \varphi_3 - 2\varphi_2)] \quad (1.70)$$

Le signal de franges de Ramsey apparaît donc comme une somme infinie de produits de trois fonctions de Bessel; chaque produit possède sa propre condition de phase  $\cos[(2p+1)(\varphi_1 + \varphi_3 - 2\varphi_2)]$ .

• Le coefficient du terme en  $\cos \Omega_0' T$  dans la formule (1.62) est proportionnel à

$$\sin \theta_2 \sin(\theta_1 + \theta_3) = \sin \theta_2 [\sin \theta_1 \cos \theta_3 + \cos \theta_1 \sin \theta_3] \quad (1.71)$$

A l'aide des développements de Bessel (1.66) on obtient un terme générique de la forme :

$$(-1)^{j+j'+j''} J_{2j+1}(\alpha_2) J_{2j'+1}(\alpha_2) J_{2j''}(\alpha_3) \cos[(2j+1)(kz + \varphi_2)] \\ \cos[(2j'+1)(kz + \varphi_1 - kv_z T)] \cos[2j''(kz + kv_z T + \varphi_3)] \quad (1.72)$$

L'examen de la dépendance en  $kv_z T$  indique que la moyenne sur  $v_z$  de ce terme sera nulle, car  $2j'+1$  et  $2j''$  ne peuvent avoir la même parité.

#### 1.4.4 COMPARAISON ENTRE LA GEOMETRIE DES QUATRE ONDES PROGRESSIVES ET LA GEOMETRIE DES TROIS ONDES STATIONNAIRES

Il est intéressant de comparer :

- le signal de franges de Ramsey à trois ondes stationnaires obtenu dans l'hypothèse  $\Omega_3 \approx 0$  dans les zones de champ :

$$\tilde{b} \tilde{b}_{osc}^* = -\frac{1}{2} e^{-2\gamma_{ba} T} \cos 2\Omega_0' T \sum_0^{\infty} J_{2p+1}(\alpha_1) J_{2p+1}(\alpha_3) J_{2(2p+1)}(\alpha_2) \cos[(2p+1)(\varphi_1 + \varphi_3 - 2\varphi_2)] \quad (1.73)$$

avec :

$$\alpha_i = 4 \Omega_{ba,i} \tilde{U}(kv_z) \quad i = 1, 2, 3$$

- au signal de franges pour les quatre ondes progressives, lorsqu'on néglige l'effet de recul ( $\delta = 0$ ) :

$$\begin{aligned} \tilde{b} \tilde{b}_{osc}^* = e^{-2\gamma_{ba}(T+2\tau)} e^{2i\Omega_0' T + i(\varphi_4^- - \varphi_3^- + \varphi_2^+ - \varphi_1^+)} & \left[ e^{-\gamma_b T'} B_1 A_2 A_3 A_4 (D_1 B_2 C_3 B_4)^* \right. \\ & \left. + e^{-\gamma_a T'} B_1 C_2 B_3 A_4 (D_1 D_2 D_3 B_4)^* \right] \quad (1.74) \\ & + c.c \end{aligned}$$

- En l'absence de relaxation et en supposant les conditions de phase respectives parfaitement satisfaites, le terme dominant de la série de Bessel  $J_1(\alpha_1) J_1(\alpha_3) J_2(\alpha_2)$  est au plus égal à .164 et  $\tilde{b} \tilde{b}_{osc}^* \approx -0,082 \cos 2 \Omega_0' T$ .

Tous les coefficients A,B,C,D de la formule (1.74) sont de module  $\frac{1}{\sqrt{2}}$  à l'optimum de champ (impulsion  $\pi/2$ ) de sorte que :

$$\tilde{b} \tilde{b}_{osc}^* = -\frac{1}{4} \cos 2 \Omega_0' T \quad (1.75)$$

Le signal de franges de Ramsey avec trois ondes stationnaires est donc sensiblement trois fois plus faible que le signal de franges obtenu avec quatre ondes progressives.

- La condition de phase  $\varphi_1 + \varphi_3 - 2\varphi_2 = 0$ , pour que les franges soient maximales en ondes stationnaires, n'intervient que par le facteur multiplicatif  $\cos(2p+1)(\varphi_1 + \varphi_3 - 2\varphi_2)$ .

En ondes progressives, le signal de franges est proportionnel à :

$$\cos(2\omega_0 T + \varphi_4^- - \varphi_3^- + \varphi_2^+ - \varphi_1^+) = \cos[2(\gamma\omega - \omega_0)T + \varphi_4^- - \varphi_3^- + \varphi_2^+ - \varphi_1^+] \quad (1.76)$$

Il apparait donc qu'une imperfection dans la condition de phase  $\varphi_4^- - \varphi_3^- + \varphi_2^+ - \varphi_1^+ = 0$  se traduira par un déplacement du système de franges, qui ne sera plus centré à  $\omega_0$ , alors qu'en ondes stationnaires, le signal de franges subira une diminution de taille, tout en restant centré à  $\omega_0$ . Dans une expérience de franges en cellule, avec quatre ondes progressives, les deux déplacements associés aux deux directions possibles de traversée des faisceaux ((1)  $\rightarrow$  (4) ou (4)  $\rightarrow$  (1)) seront opposés, de sorte que le signal résultant restera centré si les quatre ondes ont la même intensité. On retrouve la condition habituelle de non-déplacement de la raie de saturation lorsque les fronts d'ondes sont courbes [42].

Dans une expérience de franges de Ramsey sur jet, avec quatre ondes progressives, si l'on veut obtenir une haute exactitude, il sera nécessaire d'être capable de renverser le sens de propagation de la lumière ou d'inverser la direction de traversée des faisceaux en utilisant un second jet colinéaire au premier et de direction opposée. Cette technique est couramment employée dans le domaine micro-onde, pour l'horloge à césium, qui utilise la technique des franges de Ramsey à deux zones.

- Enfin, la géométrie des trois ondes stationnaires présente l'inconvénient important suivant : les deux systèmes de franges associés aux deux composantes de recul se rapprochent l'un de l'autre lorsque l'intensité du laser augmente, par déplacements lumineux [48, 49, 22]. Cet effet qui peut s'élever à plusieurs kHz (sur le calcium par exemple), est totalement absent dans la géométrie en ondes progressives, puisqu'à aucun moment les molécules ne voient simultanément deux ondes de directions opposées.



### 1.5 CAS MIXTE : UNE ONDE STATIONNAIRE ENCADRÉE PAR DEUX ONDES PROGRESSIVES DE DIRECTIONS OPPOSÉES

La dernière géométrie d'interaction intéressante et facile à traiter par les matrices  $2 \times 2$  est le cas mixte comportant une onde stationnaire centrale entre deux ondes progressives de directions opposées [29,42,93] et figure 1.5.1 .

Nous calculons le spineur  $\begin{pmatrix} b(t) \\ a(t) \end{pmatrix}$  à l'instant  $t$  de sortie de la dernière zone; l'origine des temps  $a(t)$  est arbitraire. La figure 1.9 nous présente les temps qui interviennent dans le problème.

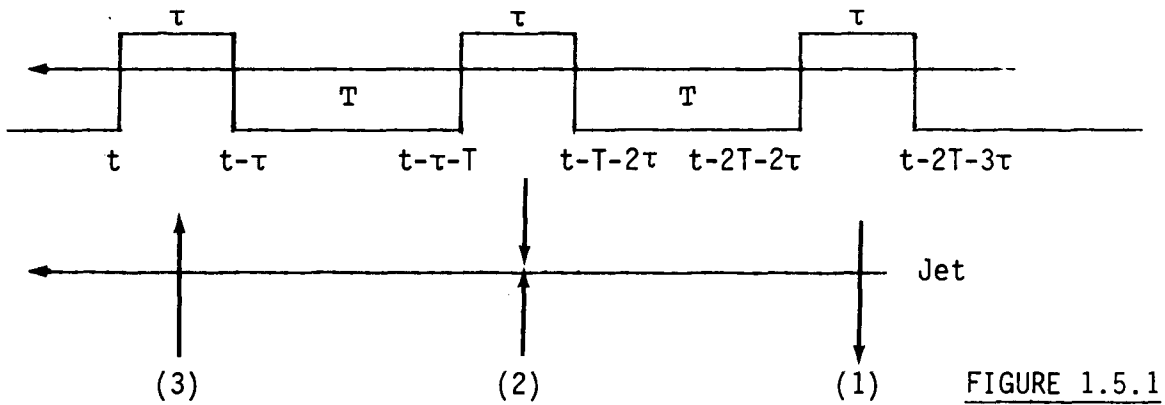


FIGURE 1.5.1

Comme au paragraphe 1.3 les ondes (1) et (3) sont des crêneaux de même durée  $\tau$  . L'onde stationnaire centrale est plane (rayon de courbure  $\infty$ ) mais de profil quelconque. Pour simplifier, on a aussi représenté sur la figure 1.5.1 un crêneau de durée  $\tau$  .

Dans ce cas mixte, il est commode de se placer dans le repère tournant à  $\omega$  pour l'onde stationnaire centrale, alors que les matrices d'évolution dans les deux ondes progressives sont indépendantes du temps (et de  $z$ ) dans les repères tournant à  $\omega \pm kv_z$  . On passera donc dans le repère le plus approprié, entre les zones de champ, par les transformations unitaires :

$$A^+ = e^{-i(kz/2 + kv_z \frac{t}{2})\sigma_3} \quad (1.77)$$

ou leurs adjointes.

Les deux changements de repère nécessaires peuvent être effectués

à n'importe quel instant entre les zones de champs. Nous avons choisi les instants  $t-\tau$  et  $t-2T-2\tau$ . La séquence de matrices est dans ce cas :

$$\begin{pmatrix} A_3 & B_3 e^{-i\varphi_3^-} \\ C_3 e^{+i\varphi_3^-} & D_3 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{ikv_z(t-\tau)/2 + i\frac{kz}{2}} & 0 \\ 0 & e^{-ikv_z(t-\tau)/2 - i\frac{kz}{2}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{i\Omega_3 T/2} & 0 \\ 0 & e^{-i\Omega_3 T/2} \end{pmatrix} \\
 \begin{pmatrix} \cos \frac{\Theta_2}{2} & i \sin \frac{\Theta_2}{2} \\ i \sin \frac{\Theta_2}{2} & \cos \frac{\Theta_2}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{i\Omega_3 T/2} & 0 \\ 0 & e^{-i\Omega_3 T/2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{ikv_z \frac{(t-2T-2\tau)}{2} + i\frac{kz}{2}} & \\ & e^{-ikv_z \frac{(t-2T-2\tau)}{2} - i\frac{kz}{2}} \end{pmatrix} \\
 \begin{pmatrix} A_1 & B_1 e^{-i\varphi_1^+} \\ C_1 e^{+i\varphi_1^+} & D_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} \quad (1.78)$$

d'où :

$$\begin{aligned}
 \tilde{b}(t) = e^{-\gamma_{ba}(T+\tau)} & \left\{ A_3 B_1 \cos \frac{\Theta_2}{2} e^{i \left[ \Omega'_0 T + kz + kv_z(t-T - \frac{3\tau}{2}) - \varphi_1^+ \right]} \right. \\
 & + i A_3 D_1 \sin \frac{\Theta_2}{2} e^{ikv_z(T+\tau/2)} \\
 & + B_3 D_1 \cos \frac{\Theta_2}{2} e^{-i \left[ \Omega'_0 T + kz + kv_z(t-T - \frac{3\tau}{2}) + \varphi_3^- \right]} \\
 & \left. + i B_3 B_1 \sin \frac{\Theta_2}{2} e^{-ikv_z(T+\tau/2) - i(\varphi_3^- + \varphi_1^+)} \right\} \quad (1.79)
 \end{aligned}$$

où

$$\Omega'_0 = \gamma\omega - \omega_0$$

La population  $\tilde{b} \tilde{b}^*$  du niveau supérieur s'écrit alors :

$$\begin{aligned} \tilde{b} \tilde{b}^* = e^{-2\gamma_{ba}(T+\tau)} & \left\{ A_3 A_3^* D_1 D_1^* \sin^2 \frac{\Theta_2}{2} + B_3 B_3^* B_1 B_1^* \sin^2 \frac{\Theta_2}{2} \right. \\ & + B_3 B_3^* D_1 D_1^* e^{(\gamma_b - \gamma_a)T} \cos^2 \frac{\Theta_2}{2} + B_1 B_1^* A_3 A_3^* e^{-(\gamma_b - \gamma_a)T} \cos^2 \frac{\Theta_2}{2} \\ & + (B_1 A_3 B_3^* D_1^* \cos^2 \frac{\Theta_2}{2} e^{2i(\Omega'_0 T + kz + kv_z t - \frac{3}{2} kv_z \tau - kv_z T) + i(\varphi_3^- - \varphi_1^+)} \\ & \left. + c.c \right\} \quad (1.80) \end{aligned}$$

+ termes s'annulant par intégration sur  $z$  ou  $v_z$ .

$$\Omega'_0 = \gamma\omega - \omega_0$$

Les termes des deux premières lignes correspondent au fond, alors que le signal de franges en  $e^{2i\Omega'_0 T}$  se trouve sur la troisième ligne.

Calcul de  $\Theta_2$

$$\Theta_2 = 4 \Omega_{ba,2} \int_{t-T-2\tau}^{t-T-\tau} \cos(kv_z t' + kz + \varphi) U(t') dt' \quad (1.81)$$

où  $U$  est le profil de l'onde stationnaire, symétrique autour de l'instant  $t-T-\frac{3\tau}{2}$ . En posant  $t'' = t' - t + T + \frac{3\tau}{2}$ , nous obtenons :

$$\Theta_2 = 4 \Omega_{ba,2} \cos[kv_z(t-T-\frac{3\tau}{2}) + kz + \varphi_2] \int_{-\tau/2}^{+\tau/2} dt'' \cos(kv_z t'') U(t'' + t - T - \frac{3\tau}{2}) \quad (1.82)$$

où  $U(t'' + t - T - \frac{3\tau}{2})$  est symétrique par rapport à 0.

On en déduit, en appelant  $\tilde{U}(kv_z)$  la transformée de Fourier de la fonction  $U$  centrée à l'origine,

$$\Theta_2 = 4 \Omega_{ba,2} \cos[kv_z(t-T-\frac{3\tau}{2}) + kz + \varphi_2] \tilde{U}(kv_z) \quad (1.83)$$

Pour voir les termes qui subsistent après intégration sur  $z$  ou  $v_z$ , nous développons

$$\cos^2 \frac{\Theta_2}{2} = \frac{1}{2} (1 + \cos \Theta_2)$$

en fonctions de Bessel.

Posons :

$$\alpha_2 = 4 \Omega_{ba,2} \tilde{U}(kv_z)$$

$$\cos \Theta_2 = J_0(\alpha_2) + 2 \sum_1^{\infty} (-1)^j J_{2j}(\alpha_2) \cos \left[ 2j(kv_z(t-T - \frac{3\tau}{2}) + kz + \varphi_2) \right], \quad (1.84)$$

la population oscillante  $\tilde{b} \tilde{b}_{osc}^*$ , correspondant aux franges se présente sous la forme suivante :

$$\begin{aligned} \tilde{b} \tilde{b}_{osc}^* &= \frac{1}{2} e^{-2\gamma_{ba}(T+\tau)} B_1 A_3 B_3^* D_1^* \left[ 1 + J_0(\alpha_2) + 2 \sum_1^{\infty} (-1)^j J_{2j}(\alpha_2) \right. \\ &\quad \left. \cos \left[ 2j(kv_z(t-T - \frac{3\tau}{2}) + kz + \varphi_2) \right] \right] \\ &\quad \times e^{2i(\Omega_0' T + kz + kv_z t - \frac{3}{2} kv_z \tau - kv_z T) + i(\varphi_3^- - \varphi_1^+)} \quad (1.85) \\ &\quad + c.c. \end{aligned}$$

Il est alors clair que dans la somme infinie, seul  $j=1$  va donner une contribution non nulle après intégration sur  $v_z$ . Il vient :

$$\begin{aligned} \tilde{b} \tilde{b}_{osc}^* &= -\frac{1}{2} e^{-2\gamma_{ba}(T+\tau)} B_1 A_3 B_3^* D_1^* e^{2i\Omega_0' T + i(\varphi_3^- - \varphi_1^+ - 2\varphi_2)} J_2(\alpha_2) \\ &\quad + c.c. \end{aligned}$$

(1.86)

A l'optimum d'intensité (impulsion  $\pi/2$  dans les zones (1) et (3)), le signal de franges est encore réduit par un facteur  $J_2(\alpha_2)$  au mieux de l'ordre de  $1/2$ , par rapport au signal de franges avec quatre ondes progressives. Cette géométrie n'est donc pas plus avantageuse que la géométrie en ondes progressives d'autant plus qu'elle conserve l'inconvénient de la

contraction des deux composantes de recul, en champ fort, à cause de la présence de l'onde stationnaire centrale (déplacements lumineux).

A l'aide des développements de Bessel de  $\sin^2 \frac{\Theta_2}{2}$  et  $\cos^2 \frac{\Theta_2}{2}$ , il est possible de calculer la taille du fond élargi par effet Doppler sur lequel se dessinent les franges de Ramsey (deux premières lignes de la formule (1.80)). En éliminant à nouveau tous les termes du développement qui s'annulent par intégration sur  $v_z$ , il reste pour le fond F :

$$F = \frac{1}{2} \left\{ (|A_3 B_1|^2 + |D_1 B_3|^2) (1 + J_0(\alpha_2)) + (|A_3 D_1|^2 + |B_1 B_3|^2) (1 - J_0(\alpha_2)) \right\} \quad (1.87)$$

En l'absence de relaxation, pour une impulsion  $\pi/2$ , dans les zones (1) et (3), et à résonance ( $\omega = \omega_0$ ), nous avons :

$$A_1 = A_3 = D_1 = D_3 = 1/\sqrt{2}$$

$$B_1 = B_3 = i/\sqrt{2}$$

de sorte que  $F \sim 1/2$  alors que les franges valent :

$$- \frac{1}{4} J_2(\alpha_2) \cos 2 \Omega_0' T \quad (1.88)$$

$\alpha_2$  étant proportionnel à  $\Omega_2$ , à l'optimum d'intensité pour  $J_2(\alpha_2)$ , nous retrouvons la diminution des franges du facteur  $J_2(\alpha_2)$  par rapport à la géométrie des quatre ondes progressives.

## 1.6 DIAGRAMMES DE MATRICE DENSITÉ EN CHAMP FORT

### 1.6.1 PRINCIPE

Une description diagrammatique en champ fort, commune aux ondes progressives et stationnaires, va nous permettre de retrouver très simplement les résultats précédents et de faire une comparaison détaillée avec les divers types d'échos de photons [50-52, 54-56].

L'évolution temporelle de la matrice densité du système à deux niveaux est schématisée par deux lignes verticales qui se lisent de bas en haut pour les temps croissants. Ces lignes représentent l'évolution des amplitudes  $\tilde{\alpha}_{m_\alpha}$  et  $\tilde{\beta}_{m_\beta}^*$  d'un élément de matrice densité :

$$\tilde{\rho}_{\alpha_{m_\alpha} \beta_{m_\beta}} = \tilde{\alpha}_{m_\alpha} \tilde{\beta}_{m_\beta}^* = \langle m_\alpha | \tilde{\rho}_{\alpha\beta} | m_\beta \rangle \quad (1.89)$$

dans la base des états d'énergie-impulsion présentée au paragraphe 1.2.  $\alpha, \beta = a$  ou  $b$ .  $m_\alpha, m_\beta$  sont des entiers qui caractérisent à un instant donné le nombre net de quanta échangés avec les champs.

On utilise la représentation (1.4) qui rend la matrice hamiltonienne (1.5) indépendante du temps et de  $z$ . Les indices dont l'évolution nous intéresse figurent sur les diagrammes, à côté de chacune des lignes verticales, sous la forme

$$\begin{array}{c} \alpha \\ m_\alpha \end{array} \left| \begin{array}{c} \beta \\ m_\beta \end{array} \right.$$

Les interactions avec les ondes (+) ou (-) ou avec les ondes stationnaires sont schématisées par des vertex comportant deux lignes ondulées dont les flèches indiquent le sens de propagation de l'onde et symbolisent l'absorption ou l'émission stimulée de photons dans cette onde. Les flèches vers la droite représentent l'onde (+). Ces vertex d'interaction sont séparés par des zones sans champ où les propagateurs sont connus. Dans un intervalle de temps  $T$ , ils s'écrivent [41, et Appendice A] :

$$\exp \left\{ [i(\gamma\omega - \omega_0) - i(m_b^2 - m_a^2)\delta - i(m_b - m_a)kv_z - \gamma_{ba}]T \right\} \quad (1.90)$$

pour :

$$\langle m_b | \tilde{\rho}_{ba} | m_a \rangle = \tilde{b}_{m_b} \tilde{a}_{m_a}^*$$

et :

$$\exp \left\{ [-i(m^2 - m'^2)\delta - i(m - m')kv_z - \gamma_\alpha]T \right\} \quad (1.91)$$

pour

$$\langle m | \tilde{\rho}_{\alpha\alpha} | m' \rangle = \tilde{\alpha}_m \tilde{\alpha}_m^*, \quad \text{avec } \alpha = a \text{ ou } b$$

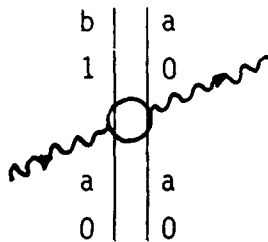
Dans le cas des interactions avec des ondes progressives, nous connaissons la matrice d'évolution pour les deux composantes  $\begin{pmatrix} \tilde{b} \\ \tilde{a} \end{pmatrix}$  pendant la durée  $\tau$  d'interaction :

$$\begin{pmatrix} \tilde{b} \\ \tilde{a} \end{pmatrix}_s = \begin{pmatrix} A & B e^{-i\varphi^+} \\ C e^{i\varphi^+} & D \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \tilde{b} \\ \tilde{a} \end{pmatrix}_e \quad (1.92)$$

On déduit immédiatement l'évolution des éléments de la matrice densité à chaque vertex par :

$$\begin{pmatrix} A & B e^{-i\varphi^+} \\ C e^{i\varphi^+} & D \end{pmatrix} \otimes \begin{pmatrix} A^* & B^* e^{i\varphi^+} \\ C^* e^{-i\varphi^+} & D^* \end{pmatrix} \quad (1.93)$$

A titre d'exemple, le facteur qui traduit le vertex



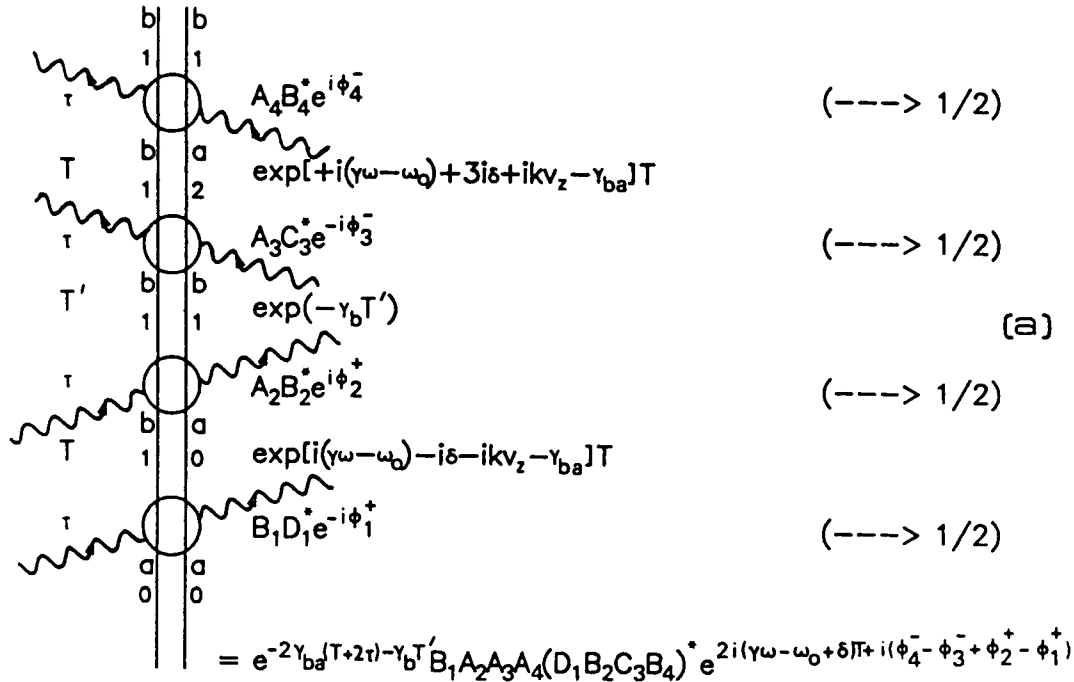
s'écrit simplement  $B e^{i\varphi^+} D^*$

Ainsi à partir d'une condition initiale définie (par exemple, le système dans son état fondamental avant toute interaction,  $\rho_{aa} = 1$ ,  $m_a = 0$ ), nous pourrions suivre l'histoire des éléments de la matrice densité du système au cours des interactions successives avec les ondes et nous déduirons le signal par simple produit des facteurs d'évolution à chaque vertex et des propagateurs (1.90) et (1.91) dans les zones noires. Puis, à chaque diagramme l'on ajoute son complexe conjugué et il reste à effectuer l'intégration sur la vitesse  $v_z$ . L'examen de la phase Doppler indique alors si le processus envisagé se moyenne, ou non, à zéro au cours de l'intégration sur  $v_z$ . De même, l'examen de l'écart à résonance fournit les termes oscillants (avec effet de recul) pour les diagrammes associés aux franges de Ramsey (Fig. 1.6.1), alors que cette dépendance oscillatoire disparaît pour les diagrammes associés aux échos de photons (Fig. 1.6.3 et 1.6.5).

## 1.6.2 COMPARAISON DES FRANGES DE RAMSEY EN ONDES PROGRESSIVES AVEC LES ECHOS DE PHOTONS

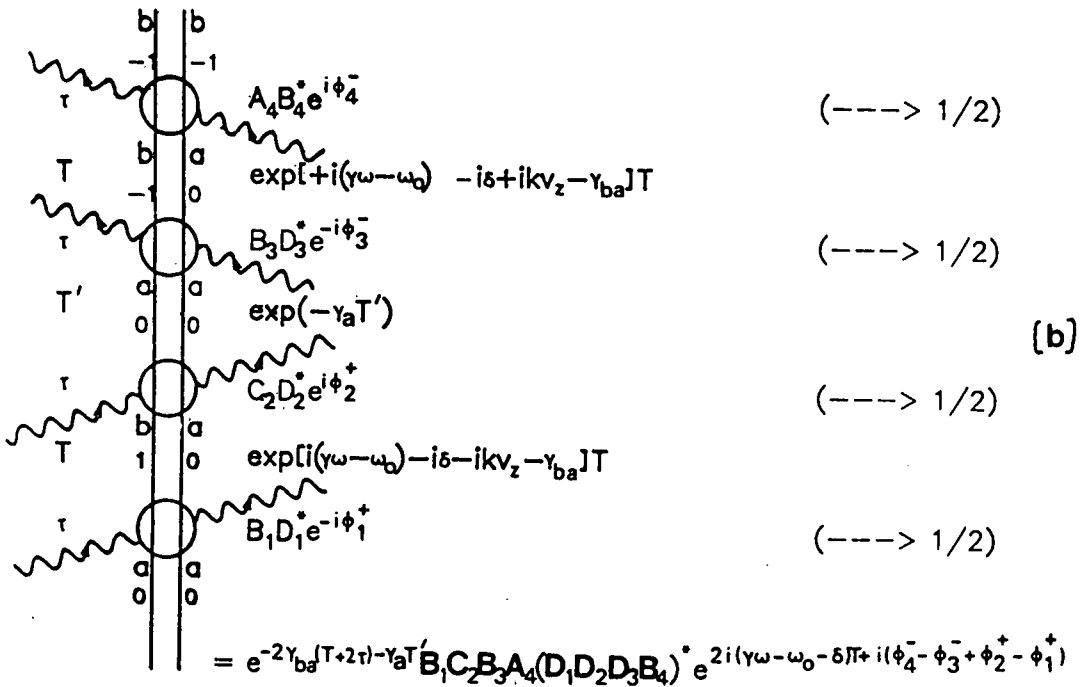
### 1.6.2.1 Les diagrammes des signaux de franges de Ramsey

Les deux diagrammes correspondant aux deux systèmes de franges déplacés par l'effet de recul de la quantité  $\pm \delta$  sont présentés sur les



### LOW FREQUENCY RECOIL PEAK OF RAMSEY FRINGES

$\bar{R}^+ \rightarrow \bar{R}^-$  (pure transposition in k space)



### HIGH FREQUENCY RECOIL PEAK OF RAMSEY FRINGES

$\bar{R}^+ \rightarrow \bar{R}^-$  (pure transposition in k space)

FIGURE 1.6.1 - Diagrammes de la matrice densité, en champ fort, correspondant aux deux pics de recul pour les franges de Ramsey avec quatre ondes progressives. La contribution de chaque diagramme est explicitement calculée en effectuant le produit des facteurs qui apparaissent à chaque vertex et des propagateurs entre zones de champ. Il reste ensuite à ajouter le diagramme complexe conjugué qui fournit l'expression analytique complexe conjuguée. Les termes entre crochets sur la droite des diagrammes indiquent la valeur numérique des coefficients pour une impulsion  $\pi/2$ . Ces deux diagrammes correspondent à une simple transposition  $k \rightarrow -k$  qui ne change que le signe du déphasage Doppler, à la différence des diagrammes d'échos de photons (Fig.1.6.3 et 1.6.5).



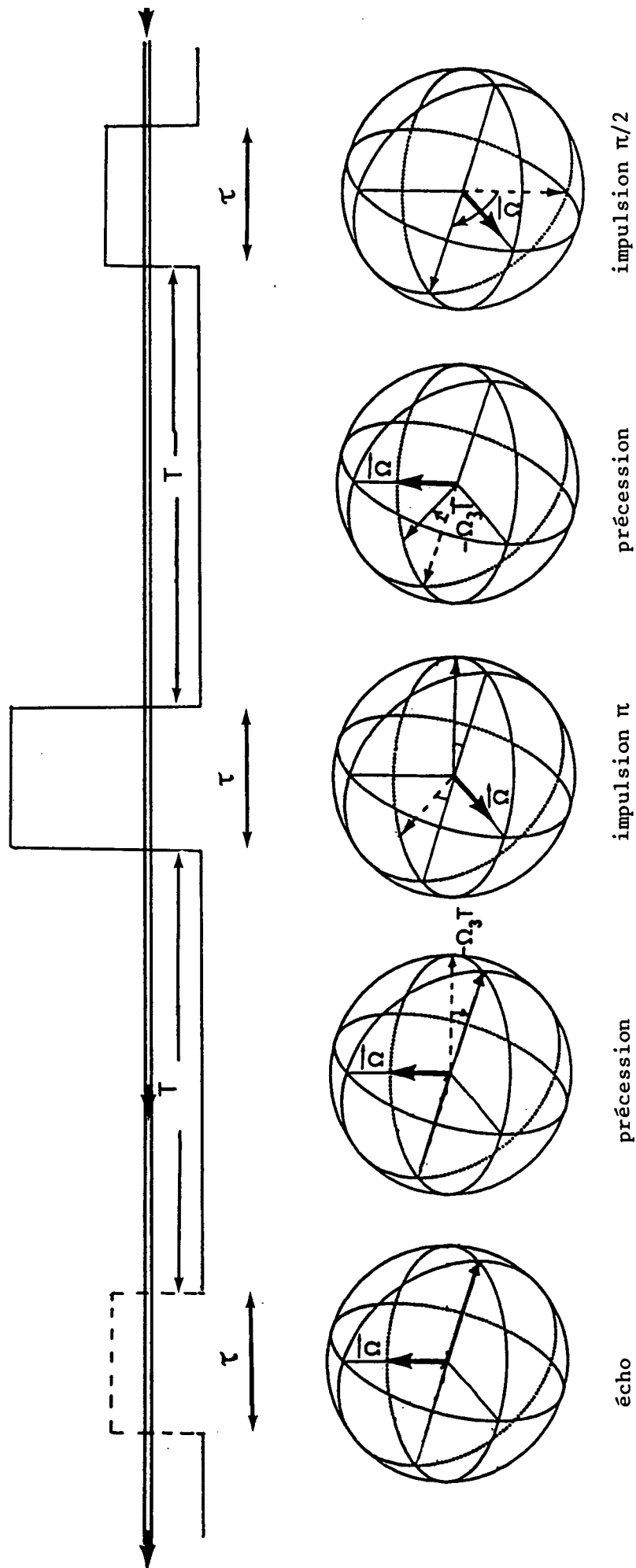


FIGURE 1.6.2

Trajectoire du spin fictif dans l'écho de photons usuel

figures 1.6.1 (a) et (b). Le pic de recul à basse fréquence ( $\propto \exp 2i(\gamma\omega - \omega_0 + \delta)T$ ) passe par la population du niveau excité  $\rho_{bb}$  dans la zone noire centrale de durée  $T'$ , tandis que le pic de recul à haute fréquence ( $\propto \exp 2i(\gamma\omega - \omega_0 - \delta)T$ ) passe par la population  $\rho_{aa}$  du niveau inférieur de la transition.

Notons que, dans les deux cas, l'information de phase transportée par  $\rho_{ba}$  dans la première zone noire de durée  $T$ , est à nouveau transférée à  $\rho_{ba}$  dans la troisième zone noire, après interaction avec les deux ondes centrales.

Il y a simple renversement dans l'espace des  $k$  ( $k \rightarrow -k$ ), ce qui renverse le déphasage Doppler.

#### 1.6.2.2 Les diagrammes de l'écho de photons usuel

La figure 1.6.3 présente l'un des diagrammes correspondant à l'écho de photons habituel [50-52,54-56]. Le système est soumis à deux (ou trois impulsions) provenant généralement d'un même laser et dans la même direction. Au bout d'un temps  $T$  écoulé depuis la dernière impulsion, égal au temps entre les deux premières impulsions, il y a émission d'un écho dans la même direction que les ondes incidentes. Si la deuxième impulsion est séparée en deux impulsions successives, l'écho est dit stimulé. Nous l'appellerons ici écho de photons stimulé vers l'avant, de façon à faire la distinction avec le cas où il existe des ondes se propageant dans deux directions opposées. La trajectoire du pseudo-spin associé est très simple [50]. Nous la rappelons brièvement sur la figure 1.6.2 dans le cas idéal d'impulsion  $\pi/2$  dans chaque zone et à résonance ( $\omega = \omega_0$ ); le début du processus est identique à celui des franges de Ramsey. A partir du vecteur orienté vers le bas (système dans le niveau fondamental), une première impulsion  $\pi/2$  crée une cohérence qui précesse ensuite librement pendant un temps  $T$  dans le plan horizontal (1), (2). Chaque classe de vitesse  $v_z$  accumule un déphasage  $kv_z T$ . La suite du processus est très différente du processus de franges de Ramsey, car l'effet des deux impulsions centrales est tout simplement une rotation d'angle  $\pi$  autour de l'axe (1). Au bout d'un temps  $T$  après la dernière impulsion, tous les dipôles se retrouvent à nouveau en phase et colinéaires à l'axe (2). Ils créent donc une polarisation macroscopique qui conduit à l'émission d'un écho au bout de ce

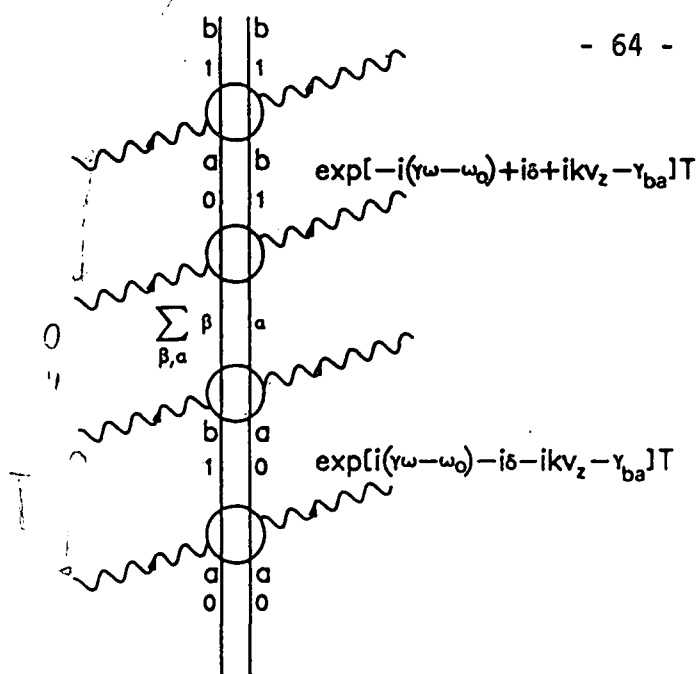


FIGURE 1.6.3

### FORWARD STIMULATED PHOTON ECHO (pure transposition from negative to positive frequencies)

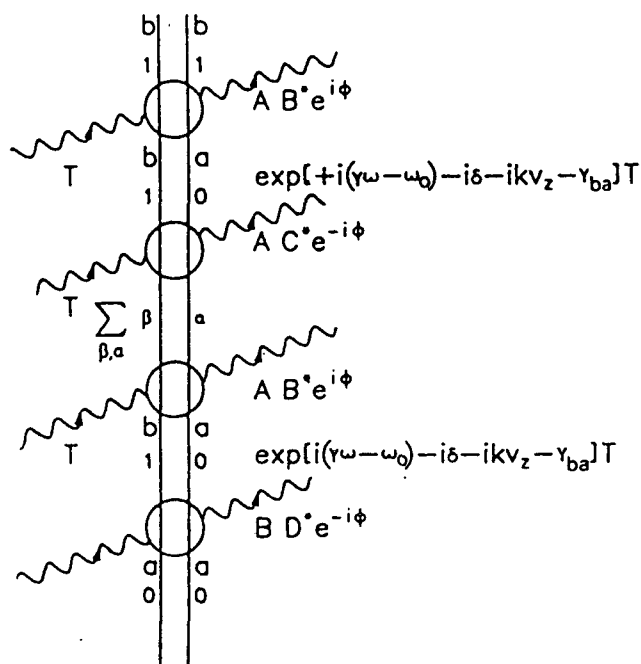


FIGURE 1.6.4

### FORWARD RAMSEY FRINGES $\propto \exp[2i(\gamma\omega - \omega_0 - \delta)]T$ (averages to zero by velocity integration)

Fig. 1.6.3 - Diagramme en champ fort correspondant à l'écho de photons stimulé vers l'avant. Les deux zones centrales peuvent être distinctes (deux impulsions  $\pi/2$  successives) ou se réduire à une seule zone en effectuant une impulsion  $\pi$ . Ce processus comporte une complète transposition des fréquences négatives vers les fréquences positives, qui est équivalente à un renversement du temps.

Fig. 1.6.4 - Ce diagramme, ("franges de Ramsey vers l'avant"), est donné comme exemple de non-renversement de la phase Doppler. En conséquence, cette contribution est nulle après intégration sur les vitesses. (Les coefficients figurant à chaque vertex correspondent au cas particulier  $\beta = \alpha = b$  dans la zone noire centrale).

temps  $T$ . Cette polarisation macroscopique peut également être détectée en appliquant effectivement un dernier champ, au même instant, sur le système.

Ainsi l'effet des deux impulsions centrales est une transposition  $\rho_{ab} \rightarrow \rho_{ba}$  qui est équivalente à un renversement du temps puisque  $\rho_{ba}$  est en  $\exp + i \omega t$  et  $\rho_{ab}$  en  $\exp - i \omega t$ .

### 1.6.2.3 Comparaison

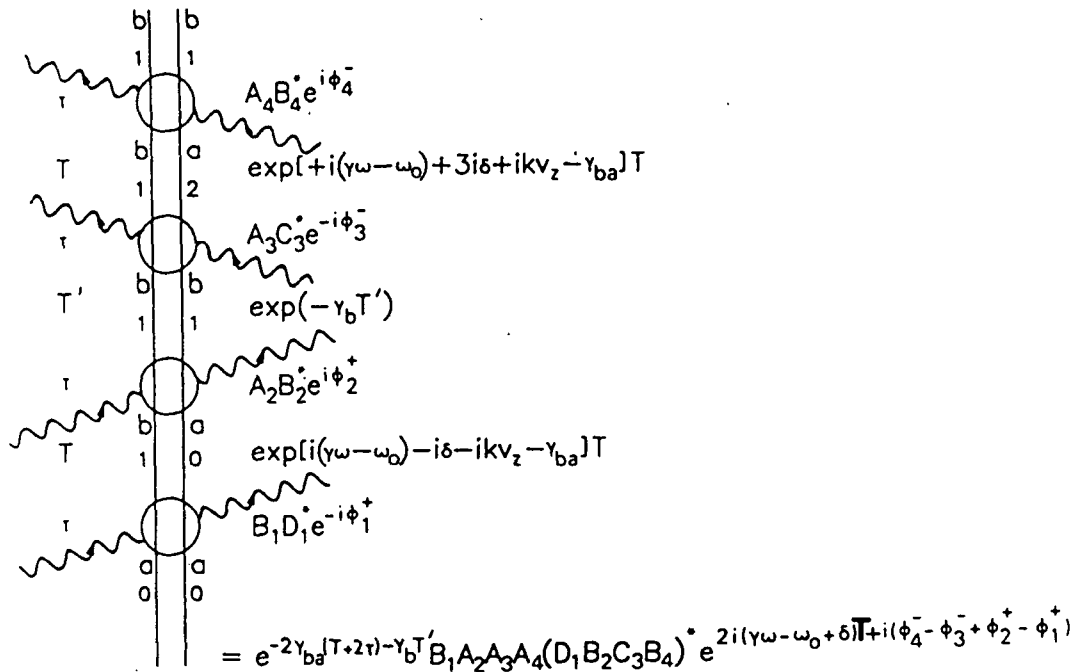
Notons que dans l'écho de photons usuel que nous venons de décrire, le mécanisme de déphasage n'est pas renversé entre les deux zones de précession, alors qu'il l'est en franges de Ramsey ( $k \rightarrow -k$ ). Il y a renversement du temps  $\rho_{ba} \rightarrow \rho_{ab}$  en écho de photons et non en franges de Ramsey ( $\rho_{ba} \rightarrow \rho_{ba}$ ).

Si aucune des transpositions précédentes (temporelle ou spatiale) n'a lieu, on obtient le diagramme de la figure 1.6.4 que l'on peut appeler franges de Ramsey vers l'avant puisqu'il reste une dépendance en  $\exp \{2i(\gamma\omega - \omega_0 - \delta)T\}$ . Il est clair sur le diagramme que ce signal se moyenne à zéro par intégration sur les vitesses  $v_z$ .

Si les deux transpositions (temporelle et spatiale) ont lieu simultanément, (diagramme de la figure 1.6.5), on obtient l'écho de photons stimulé vers l'arrière (contribution de  $\vec{R}_{avance}^-$  sur la figure 1.3.6) et la dépendance en  $\exp \{2i k v_z T\}$  indique que la moyenne sur  $v_z$  sera nulle.

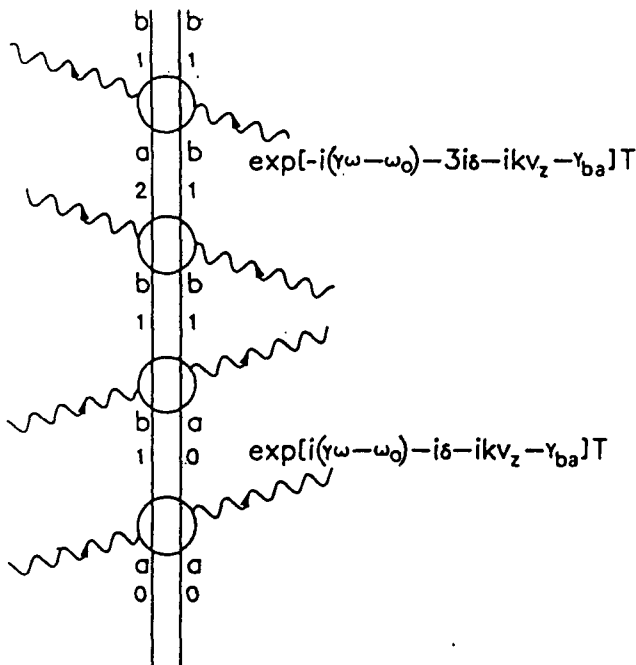
Le vecteur de Bloch du système, qui conduit au signal de franges de Ramsey est  $\vec{R}_{retard}^-$  sur la figure 1.3.6 et est justement colinéaire à  $\vec{R}^+$  avant les deux impulsions centrales, alors que le vecteur qui subit la rotation d'angle  $\pi$  autour de l'axe (1) est précisément  $\vec{R}_{avance}^-$ . C'est l'écho de photons stimulé vers l'arrière dont la contribution sera nulle après l'intégration sur les vitesses  $v_z$  puisque le déphasage Doppler qui lui correspond est doublé.

Cependant, cet écho de photons vers l'arrière a été observé dans les solides cristallins pour lesquels le mécanisme de déphasage inhomogène n'est plus l'effet Doppler et n'est donc pas affecté par la transposition  $k \rightarrow -k$  (renversement de la direction de propagation des faisceaux lumineux). En phase solide, il faut également effectuer une intégration sur la distribution des fréquences de résonance. Seuls subsistent alors l'écho de photons



### LOW FREQUENCY RECOIL PEAK OF RAMSEY FRINGES

$\bar{R}^+ \rightarrow \bar{R}^-$  (pure transposition in k space)



### BACKWARD STIMULATED PHOTON ECHO

(time reversal + z reversal)

FIGURE 1.6.5 - Diagramme en champ fort de l'écho de photons stimulé vers l'arrière. Il y a, ici, à la fois renversement du temps et du déphasage Doppler conduisant à une phase Doppler non nulle. Ce processus disparaît donc après intégration sur les vitesses en milieu gazeux, mais subsiste par exemple, dans les solides cristallins où le mécanisme de déphasage inhomogène ne s'inverse pas avec le sens de propagation des faisceaux [ 55 ]. L'un des diagrammes de franges de Ramsey est rappelé à titre de comparaison.

usuel et l'écho de photons stimulé vers l'arrière [55].

### Remarque

Nous avons réservé le terme "écho de photons" au processus habituel d'écho de photons que nous venons de décrire, où le pseudo-spin effectue une rotation d'angle  $\pi$  autour de l'axe  $\hat{1}$ . Comme nous venons de le montrer, ceci est équivalent à un renversement du temps ou encore à la transposition  $\rho_{ba} \rightarrow \rho_{ab}$  et vice versa.

Cependant, on trouve souvent dans la littérature une définition beaucoup plus large de l'écho de photons. Le terme "écho de photons" est employé à chaque fois qu'à la suite d'un certain nombre d'impulsions lumineuses, il y a à nouveau création d'une polarisation macroscopique et réémission d'un champ. Avec cette définition généralisée, les franges de Ramsey avec quatre ondes progressives peuvent être considérées comme un écho de photons stimulé vers l'arrière. Cependant, il est essentiel de bien faire la différence entre les contributions de  $R_{\text{retard}}^-$  (franges de Ramsey) et  $R_{\text{avance}}^-$  dont la contribution est nulle dans les gaz après intégration sur  $v_z$ , mais qui en phase solide cristalline, par exemple, fournit un vrai écho de photons stimulé vers l'arrière, avec notre définition restrictive du terme "écho de photons" [55].

## 1.6.3 DIAGRAMMES EN ONDES STATIONNAIRES

### 1.6.3.1 Calcul de la matrice de transfert

Si l'on souhaite continuer d'utiliser la représentation (1.4) pour faire une comparaison simple avec le cas des ondes progressives, il faut écrire la matrice reliant les vecteurs sortant et entrant :

$$\begin{pmatrix} \vdots \\ \tilde{b}_{m+1} \\ \tilde{a}_m \\ \tilde{b}_{m-1} \\ \vdots \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \begin{pmatrix} \tilde{b}_{m+1} \\ \tilde{a}_m \\ \tilde{b}_{m-1} \\ \vdots \end{pmatrix} \quad t_1^+ \quad t_1^-$$

dans le cas d'une onde stationnaire.

Comme précédemment, l'onde stationnaire est supposée symétrique et centrée en  $t_1$ . Rappelons que chaque  $\alpha_m$  est proportionnel à  $e^{imk(z+v_z t)}$ . [Développement de Fourier de  $|\psi(t)\rangle$ ].

La matrice infinie cherchée peut s'obtenir simplement à partir de la matrice (2 x 2) :

$$\begin{pmatrix} \cos \frac{\Theta}{2} & i \sin \frac{\Theta}{2} \\ i \sin \frac{\Theta}{2} & \cos \frac{\Theta}{2} \end{pmatrix} \text{ obtenue pour } \begin{pmatrix} \sum_m \tilde{b}_m e^{im(kz+v_z t)} \\ \sum_m \tilde{a}_m e^{im(kz+v_z t)} \end{pmatrix}$$

dans l'hypothèse où  $\Omega_3$  est négligé dans chaque zone de champ (formule (1.39) du paragraphe 1.4).

Rappelons que :

$$\Theta = 4 \Omega_{ba} \cos(kz + kv_z t_1 + \varphi) \tilde{U}(kv_z) \quad (1.94)$$

et

$$\tilde{U}(kv_z) = \int_{-\infty}^{+\infty} \cos kv_z \tau U(v_x \tau) d\tau \quad (1.95)$$

Il suffit alors de développer à nouveau  $\cos \frac{\Theta}{2}$  et  $\sin \frac{\Theta}{2}$  en fonctions de Bessel pour sortir la dépendance spatiale :

$$\cos \frac{\Theta}{2} = J_0(\alpha) + 2 \sum_1^{\infty} (-1)^j J_{2j}(\alpha) \cos[2j(kz + kv_z t_1 + \varphi)] \quad (1.96)$$

$$\sin \frac{\Theta}{2} = 2 \sum_0^{\infty} (-1)^j J_{2j+1}(\alpha) \cos[(2j+1)(kz + kv_z t_1 + \varphi)] \quad (1.97)$$

$$\alpha = 2 \Omega_{ba} \tilde{U}(kv_z)$$

et l'on obtient immédiatement la matrice reliant les vecteurs entrant et

sortant :

$$\begin{pmatrix} \vdots \\ \tilde{a}_{m+2} \\ \tilde{b}_{m+1} \\ \tilde{a}_m \\ \tilde{b}_{m-1} \\ \vdots \end{pmatrix}_{t_1^+} = \begin{bmatrix} J_0 & i(-1)^0 J_1 e^{i\varphi} & (-1)^1 J_2 e^{2i\varphi} & i(-1)^1 J_3 e^{3i\varphi} \\ i(-1)^0 J_1 e^{-i\varphi} & J_0 & iJ_1 e^{i\varphi} & -J_2 e^{2i\varphi} \\ -J_2 e^{-2i\varphi} & +iJ_1 e^{-i\varphi} & J_0 & iJ_1 e^{i\varphi} \\ -iJ_3 e^{-3i\varphi} & -J_2 e^{-2i\varphi} & iJ_1 e^{-i\varphi} & J_0 \end{bmatrix} \begin{pmatrix} \vdots \\ \tilde{a}_{m+2} \\ \tilde{b}_{m+1} \\ \tilde{a}_m \\ \tilde{b}_{m-1} \\ \vdots \end{pmatrix}_{t_1^-} \quad (1.98)$$

Le terme générique de cette matrice s'écrit :

$$A_{m+p,m} = i^p e^{ip\varphi}$$

Nous allons pouvoir écrire des diagrammes similaires aux précédents puisque cette matrice fournit pour chaque vertex (interaction) la fonction de Bessel appropriée qui relie  $\tilde{a}_{m+p}$  à  $\tilde{b}_m$ . A la différence des diagrammes en ondes progressives, il restera cependant à sommer sur toutes les contributions possibles au signal :  $m, p, \dots$ .

Pour les zones sans champ, les propagateurs sont identiques aux propagateurs utilisés au paragraphe précédent (avec effet de recul).

### 1.6.3.2 Les diagrammes en franges de Ramsey avec trois ondes stationnaires et l'effet de recul

Les deux types de diagrammes qui interviennent pour les franges de Ramsey à trois zones sont présentés sur la figure 1.6.6. Nous nous sommes limités à la contribution de l'harmonique 1 pour  $\rho_{ba}$  dans les zones de précession libre, de sorte que les indices  $m$  et  $m'$  dans ces zones ne diffèrent que d'une unité.

Le signal de franges s'obtient en effectuant simplement le produit de tous les facteurs apparaissant sur chaque diagramme. Il reste ensuite à



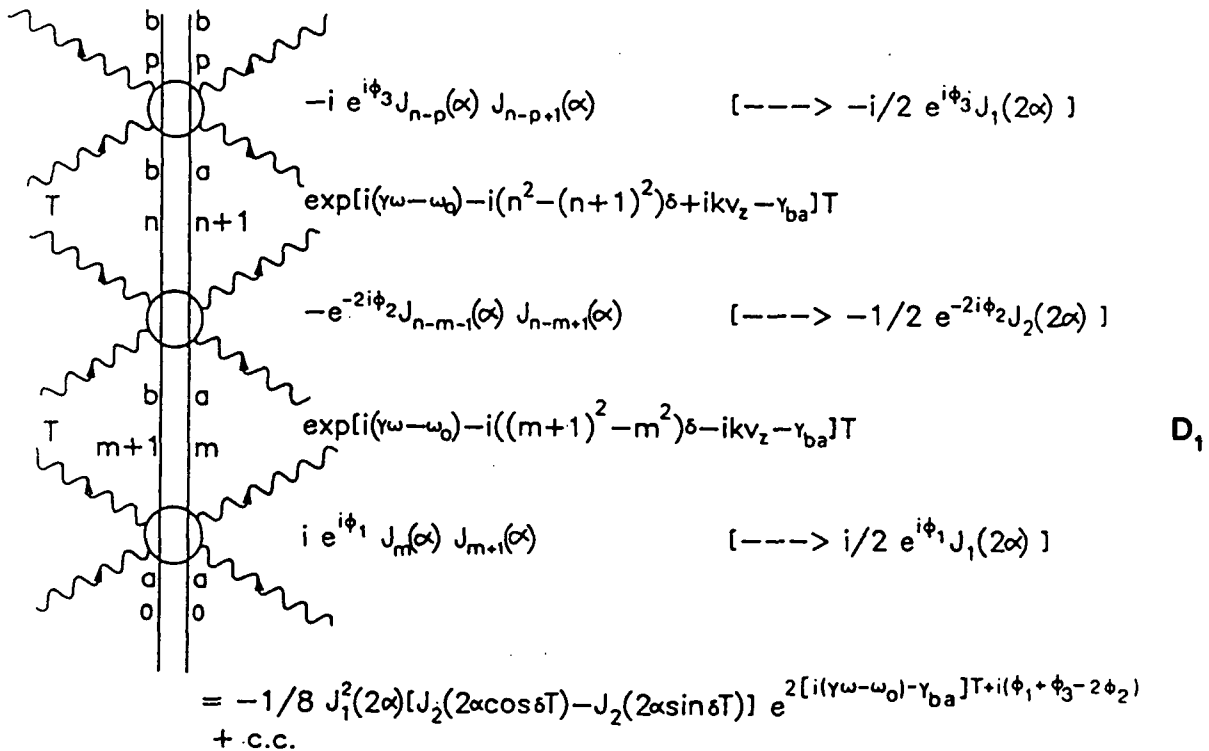
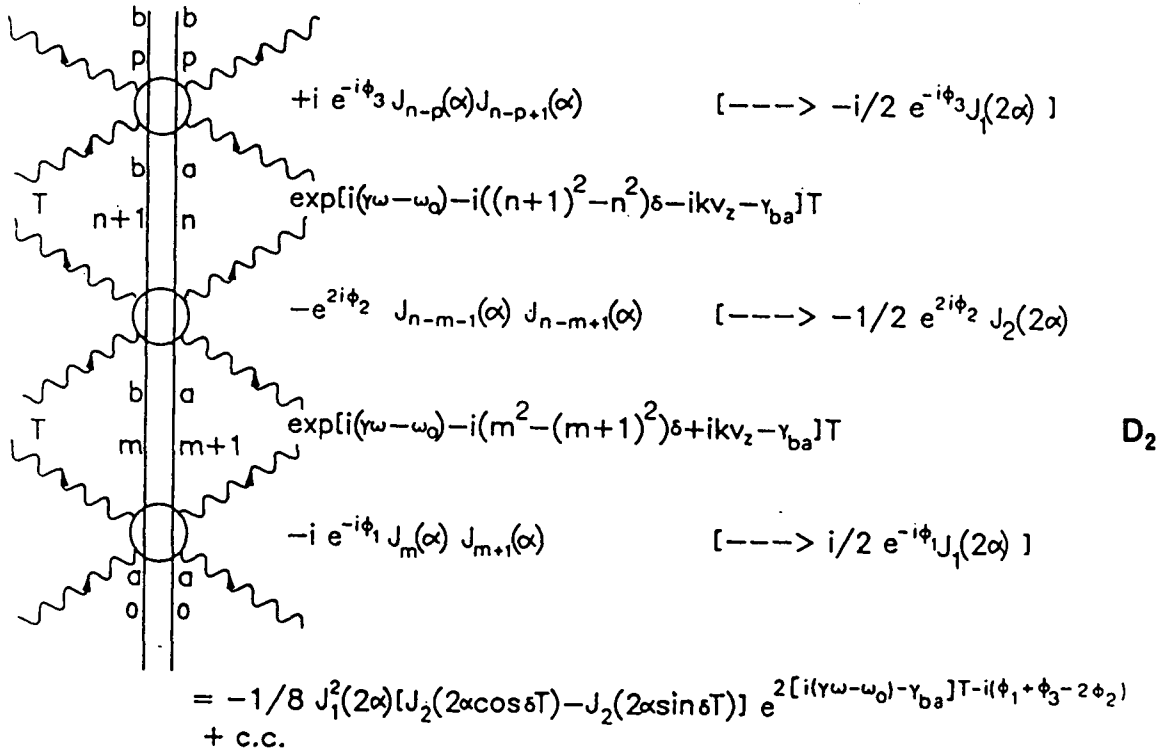


FIGURE 1.6.6 - Diagrammes de la matrice densité, en champ fort, pour les franges de Ramsey en utilisant trois ondes stationnaires. Seule la contribution des harmoniques 1 et -1 des éléments non diagonaux de la matrice densité qui précèdent librement dans les zones noires, figure sur ces diagrammes. (La contribution des harmoniques plus élevées peut être calculée de la même façon). L'expression analytique finale figurant sur chaque diagramme est obtenue par sommation sur les entiers  $m, n, p$ .  $\alpha = 2\Omega_{ba} \tilde{U}(kv_z)$ . Lorsque l'effet de recul peut être négligé, les facteurs apparaissant entre crochets sur la droite peuvent être directement obtenus à partir de l'expression (1.113).

effectuer la sommation sur m, n et p. Celle-ci est analytique [57].

### Calcul du diagramme D<sub>1</sub>

Le calcul se fait à l'aide des règles de sommation suivantes pour les fonctions de Bessel :

$$\forall r \in \mathbb{N} \quad \sum_{m \text{ pair} \in \mathbb{Z}} J_m(\alpha) J_{m+r}(\alpha) = \frac{1}{2} (\delta_{r,0} + J_r(2\alpha)) \quad (1.99)$$

$$\sum_{m \text{ impair} \in \mathbb{Z}} J_m(\alpha) J_{m+r}(\alpha) = \frac{1}{2} (\delta_{r,0} - J_r(2\alpha)) \quad (1.100)$$

et

$$\forall r \neq 0 \in \mathbb{Z} \quad \sum_{m=-\infty}^{+\infty} J_m(\alpha) J_{m+r}(\alpha) = 0 \quad (1.101)$$

$$\forall r \in \mathbb{N} \quad J_r(2\alpha) = \sum_{m=-\infty}^{+\infty} (-1)^m J_m(\alpha) J_{m+r}(\alpha) \quad (1.102)$$

et

$$\sum_{m \text{ pair}} J_m(\alpha) J_{m+r}(\alpha) e^{i(2m+r)\delta} = \frac{1}{2} [i^r J_r(2\alpha \sin \delta) + J_r(2\alpha \cos \delta)] \quad (1.103)$$

$$\sum_{m \text{ impair}} J_m(\alpha) J_{m+r}(\alpha) e^{i(2m+r)\delta} = \frac{1}{2} [i^r J_r(2\alpha \sin \delta) - J_r(2\alpha \cos \delta)] \quad (1.104)$$

Il s'agit de calculer la somme suivante :

$$D_1 = -e^{i(\varphi_1 + \varphi_3 - 2\varphi_2)} \frac{2iT [\gamma\omega - \omega_0 + i\gamma_{ba}]}{e} \times \sum_{\substack{p, n, m \\ m \text{ pair} \\ n \text{ impair} \\ p \text{ impair}}} J_{n-p}(\alpha) J_{n-p+1}(\alpha) J_{n-m-1}(\alpha) J_{-m+n+1}(\alpha) J_{m+1}(\alpha) J_m(\alpha) e^{2i\delta T(n-m)} \quad (1.105)$$

On pose  $\ell = n-m$ .  $\ell$  sera nécessairement impair et la triple somme s'écrit:

$$S = \sum_{p,m,\ell} J_{\ell+m-p}(\alpha) J_{\ell+m-p+1}(\alpha) J_{\ell-1}(\alpha) J_{\ell+1}(\alpha) J_m(\alpha) J_{m+1}(\alpha) e^{2i\ell\delta T} \quad (1.106)$$

On effectue la somme sur  $p$  :

$$\sum_p J_{\ell+m-p}(\alpha) J_{\ell+m-p+1}(\alpha) = - \sum_p J_{p-\ell-m}(\alpha) J_{p-\ell-m-1}(\alpha)$$

En posant :  $q = p-\ell-m-1$   
( $q$  impair)

cette somme vaut :  $- (-\frac{1}{2} J_1(2\alpha))$

La somme  $S$  se réduit donc à :

$$S = \frac{1}{2} J_1(2\alpha) \sum_{\substack{\ell, m \\ \ell \text{ impair} \\ m \text{ pair}}} J_{\ell-1}(\alpha) J_{\ell+1}(\alpha) J_m(\alpha) J_{m+1}(\alpha) e^{2i\ell\delta T} = \frac{1}{2} J_1(2\alpha) \times \\ \times \frac{1}{2} J_1(2\alpha) \times \sum_{\ell \text{ impair}} J_{\ell-1}(\alpha) J_{\ell+1}(\alpha) e^{2i\ell\delta T} \quad (1.107)$$

En utilisant (1.103) avec  $\ell' = \ell-1$  ( $\ell'$  pair)

$$S = \frac{1}{4} J_1^2(2\alpha) \times \frac{1}{2} [-J_2(2\alpha \sin \delta T) + J_2(2\alpha \cos \delta T)]$$

Le diagramme  $D_1$  de la figure 1.6.6 vaut donc :

$$D_1 = -\frac{1}{8} e^{i(\varphi_1+\varphi_3-2\varphi_2)} e^{2i(\gamma\omega-\omega_0)T} e^{-2\gamma_{ba}T} J_1^2(2\alpha) [J_2(2\alpha \cos \delta T) - J_2(2\alpha \sin \delta T)] \quad (1.108)$$

Le diagramme  $D_2$  donne exactement la même expression avec simple changement de signe des trois phases

$$(\varphi_1+\varphi_3-2\varphi_2) \rightarrow -(\varphi_1+\varphi_3-2\varphi_2)$$

Ajoutant les contributions des deux diagrammes,  $D_1$  et  $D_2$ , nous trouvons pour le signal de franges en ondes stationnaires avec l'effet de recul :

$$\tilde{b} \tilde{b}^* = -\frac{1}{2} e^{-2\gamma_{ba} T} J_1^2(2\alpha) [J_2(2\alpha \cos \delta T) - J_2(2\alpha \sin \delta T)] \cos 2(\gamma \omega - \omega_0) T \cos(\varphi_1 + \varphi_3 - 2\varphi_2) \quad (1.109)$$

Lorsque nous faisons tendre  $\delta$  vers 0, (effet de recul négligeable), nous retrouvons le premier terme du développement (1.73) :  $-\frac{1}{4} J_1^2(2\alpha) J_2(2\alpha)$ .

Dans le cas où l'on n'est pas intéressé par l'effet de recul, il est possible d'éviter les sommations sur  $m, n, p$  de fonctions de Bessel, en partant directement, comme au paragraphe précédent 1.6.3.1, du produit de Kronecker des deux matrices :

$$\begin{pmatrix} \cos \frac{\Theta}{2} & i \sin \frac{\Theta}{2} \\ i \sin \frac{\Theta}{2} & \cos \frac{\Theta}{2} \end{pmatrix} \otimes \begin{pmatrix} \cos \frac{\Theta}{2} & -i \sin \frac{\Theta}{2} \\ -i \sin \frac{\Theta}{2} & \cos \frac{\Theta}{2} \end{pmatrix} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1+\cos \Theta & -i \sin \Theta & i \sin \Theta & 1-\cos \Theta \\ -i \sin \Theta & 1+\cos \Theta & 1-\cos \Theta & i \sin \Theta \\ i \sin \Theta & 1-\cos \Theta & 1+\cos \Theta & -i \sin \Theta \\ 1-\cos \Theta & i \sin \Theta & -i \sin \Theta & 1+\cos \Theta \end{pmatrix} \quad (1.110)$$

et en utilisant ensuite les développements de Bessel (1.66) avec l'argument double  $\Theta$ . La matrice (1.110) donne l'évolution du vecteur de Liouville  $\rho$  de composantes :

$$\begin{pmatrix} \tilde{b} & \tilde{b}^* \\ \tilde{b} & \tilde{a}^* \\ \tilde{a} & \tilde{b}^* \\ \tilde{a} & \tilde{a}^* \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \rho_{bb} \\ \rho_{ba} \\ \rho_{ab} \\ \rho_{aa} \end{pmatrix}$$

Le développement de Fourier de  $\rho$  peut s'écrire :

$$\rho = \sum_k \rho^{(2k)} \quad (1.111)$$

Avec :

$$\rho^{(2k)} = \begin{pmatrix} \rho_{bb}^{(2k)} \\ \rho_{ba}^{(2k+1)} \\ \rho_{ab}^{(2k+1)} \\ \rho_{aa}^{(2k)} \end{pmatrix} \quad (1.112)$$

On souhaite alors écrire la matrice  $M_j$  reliant l'harmonique  $2k$  de  $\rho$ ,  $\rho^{(2k)}$  et l'harmonique  $2(k-j)$ ,  $\rho^{(2(k-j))}$ . Cette matrice s'obtient à l'aide des développements de Bessel de  $\cos \Theta$  et  $\sin \Theta$  dans la matrice (1.110) et s'écrit :

$$\begin{pmatrix} \rho_{bb}^{(2k)} \\ \rho_{ba}^{(2k+1)} \\ \rho_{ab}^{(2k+1)} \\ \rho_{aa}^{(2k)} \end{pmatrix} = \frac{e}{2} e^{2ij\varphi} \begin{bmatrix} \delta_{j0} + (-1)^j J_{2j} & +i(-1)^j J_{2j-1} e^{-i\varphi} & -i(-1)^j J_{2j-1} e^{-i\varphi} & \delta_{j0} - (-1)^j J_{2j} \\ -i(-1)^j J_{2j+1} e^{i\varphi} & \delta_{j0} + (-1)^j J_{2j} & \delta_{j0} - (-1)^j J_{2j} & i(-1)^j J_{2j+1} e^{i\varphi} \\ i(-1)^j J_{2j+1} e^{i\varphi} & \delta_{j0} - (-1)^j J_{2j} & \delta_{j0} + (-1)^j J_{2j} & -i(-1)^j J_{2j+1} e^{i\varphi} \\ \delta_{j0} - (-1)^j J_{2j} & -i(-1)^j J_{2j-1} e^{-i\varphi} & +i(-1)^j J_{2j-1} e^{-i\varphi} & \delta_{j0} + (-1)^j J_{2j} \end{bmatrix} \begin{pmatrix} \rho_{bb}^{(2(k-j))} \\ \rho_{ba}^{(2(k-j)+1)} \\ \rho_{ab}^{(2(k-j)+1)} \\ \rho_{aa}^{(2(k-j))} \end{pmatrix} \quad (1.113)$$

Pour la clarté, l'argument  $2\alpha = 4 \Omega_{ba} \tilde{U}(kv_z)$  des fonctions de Bessel a été omis dans la matrice (1.113). A partir d'une condition initiale donnée, ( $\rho_{aa} = \rho_{aa}^{(0)} = 1$ , par exemple), on retrouve le développement en perturbation usuel de la matrice densité. Si l'on se souvient que la fonction  $\tilde{U}(kv_z)$  est la transformée de Fourier du profil spatial de la zone de champ, cette matrice est une généralisation, pour des profils arbitraires du laser, des formules usuelles de la théorie des lasers à gaz en ondes planes [58, 59].

A titre d'exemple, il est immédiat, à l'aide de ces matrices  $M_j$ , de retrouver les facteurs qui interviennent à chaque vertex sur les diagrammes  $D_1$  et  $D_2$  en ondes stationnaires de la figure 1.6.6. Si l'on se limite aux contributions des harmoniques  $\pm 1$  pour les cohérences entre les zones de

champ, seules les matrices  $M_0$ ,  $M_1$  et  $M_{-1}$  interviennent. Par exemple, à partir de la condition initiale

$$\begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix} \text{ et la matrice } M_0, \text{ on déduit le vecteur } \begin{pmatrix} \rho_{bb}^{(0)} \\ \rho_{ba}^{(1)} \\ \rho_{ab}^{(1)} \\ \rho_{aa}^{(0)} \end{pmatrix}$$

$$\begin{pmatrix} \rho_{bb}^{(0)} \\ \rho_{ba}^{(1)} \\ \rho_{ab}^{(1)} \\ \rho_{aa}^{(0)} \end{pmatrix} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 - J_0 & & & \\ & i J_1 e^{i\varphi_1} & & \\ & & -i J_1 e^{i\varphi_1} & \\ & & & 1 + J_0 \end{pmatrix} \quad (1.114)$$

dont la composante  $\rho_{ba}^{(1)} = \frac{1}{2} i J_1 e^{i\varphi_1}$  n'est autre que  $\sum_m \tilde{b}_{m+1} \tilde{a}_m^*$  du diagramme  $D_2$ . [La cohérence  $\rho_{ba}^{(-1)}$  du diagramme  $D_1$  provient du choix  $k = j = -1$ ]. Nous avons fait figurer sur la droite de chaque diagramme, entre crochets, le terme correspondant  $\rho_{ba}^{(1)} = \frac{1}{2} i J_1 e^{i\varphi_1}$ .

Pour avoir la cohérence  $\rho_{ba}^{(-1)}$  qui précède entre les zones 2 et 3, à partir de  $\rho_{ba}^{(1)}$ , nous choisissons  $k = j = -1$  dans la formule (1.113). La matrice  $M_{-1}$  relie  $\rho_{ba}^{(-1)}$  à  $\rho_{ba}^{(1)}$  par le facteur  $-\frac{1}{2} J_2 e^{-2i\varphi_2}$ . Enfin la population finale d'harmonique  $k = 0$  est reliée à  $\rho_{ba}^{(-1)}$  par  $M_1$  et le facteur multiplicatif s'écrit :  $-\frac{1}{2} e^{i\varphi_3} J_1$ .

Par simple produit des facteurs apparaissant entre crochets sur la droite de la figure 1.6.6, on retrouve immédiatement le facteur  $\frac{1}{8} J_1^2 (2\alpha) J_2 (2\alpha)$  qui donne une réduction d'un tiers du signal de franges en ondes stationnaires, comparé au signal en ondes progressives. Les contributions des harmoniques plus élevés de la cohérence  $\rho_{ba}$  précessant dans les zones noires, sont négligeables lorsque le facteur  $2J_1^2 (2\alpha) J_2 (2\alpha)$  est optimum.

#### 1.6.4 D'AUTRES DIAGRAMMES

Il est clair que ces diagrammes en champ fort peuvent être appliqués à une grande variété de problèmes en spectroscopie non-linéaire. Nous nous limiterons aux deux exemples suivants :

##### 1.6.4.1 Diagramme correspondant au cas mixte : une onde stationnaire encadrée par deux ondes progressives de sens opposés [29,42,53]

Ce diagramme est présenté sur la figure 1.6.7. Il est clair que le signal de franges de Ramsey est réduit par un facteur  $J_2(2\alpha) \sim 0,5$  à l'optimum de champ, par rapport au signal provenant de l'utilisation de quatre ondes progressives.

##### 1.6.4.2 Diagramme de l'écho de photons induit vers l'arrière par une onde stationnaire [60]

Cette géométrie, récemment proposée par CARLSON et al. [60], est une combinaison de l'écho de photons usuel vers l'avant, avec la géométrie des franges de Ramsey. Elle comprend (Fig. 1.6.8) deux ondes progressives suivies d'une onde stationnaire et la réémission se fait vers l'arrière à l'instant  $t_e = 2t_2 - t_1$ . Il y a renversement du temps dans la seconde zone de précession de durée  $\tau'$  et renversement du déphasage (ou de  $z$ ) dans la troisième zone de précession. Nous constatons que le signal est indépendant de  $v_z$  à l'instant  $t_e = 2t_2 - t_1$  et qu'il présente une dépendance en  $2i\Delta(\tau - \tau')$ . Il est sensible à l'écart à la résonance, propriété que les échos de photons usuels n'ont pas. En conséquence, cet écho n'existerait pas dans les solides (où  $\omega_0$  varie avec la position).

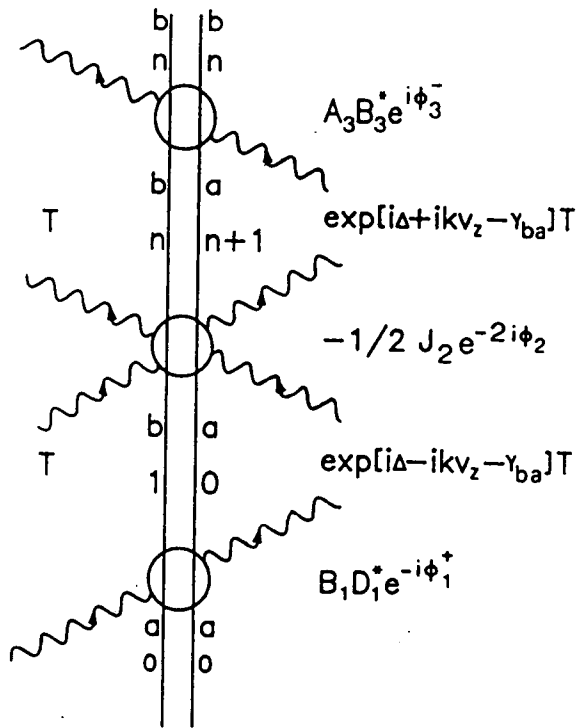


FIGURE 1.6.7

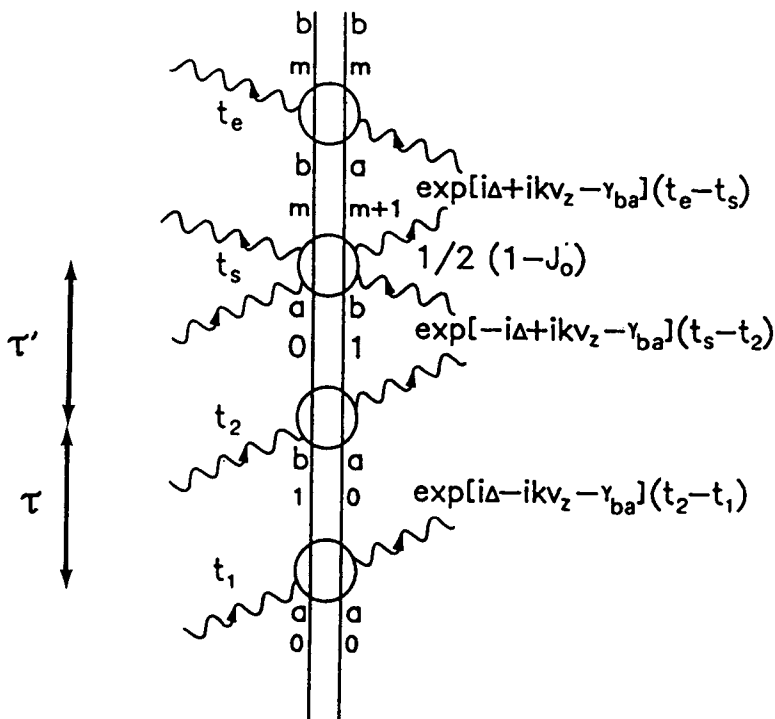


FIGURE 1.6.8

Fig. 1.6.7 - Diagramme en champ fort correspondant aux franges de Ramsey utilisant une onde stationnaire encadrée par deux ondes progressives de direction opposées. La comparaison avec les diagrammes en ondes progressives de la Figure 1.6.1 fait immédiatement apparaître une réduction du signal par le facteur  $J_2(2\alpha) \sim 0,5$ .

Fig. 1.6.8 - Diagramme en champ fort de l'écho de photons vers l'arrière induit par une onde stationnaire, proposé dans la référence [ 60 ].



## CHAPITRE 2

### LE SPECTROMÈTRE DE SATURATION

## 2.1 INTRODUCTION \*

### 2.1.1 PRESENTATION GENERALE DU SPECTROMETRE

Nous consacrerons ce chapitre à la description détaillée du spectromètre infrarouge [61,30,36,37] dont la partie optique est présentée Fig. 2.1.1 et la partie électronique, Fig. 2.1.2 .

L'ensemble de l'installation est composée de deux lasers conventionnels, fonctionnant à basse pression (5-15 Torr) et de deux lasers guides d'ondes où la pression est nettement plus élevée (30-100 Torr). Pour ces quatre lasers, le milieu amplificateur peut aussi bien être  $\text{CO}_2$  que  $\text{N}_2\text{O}$ . Nous associons alors deux cuves d'absorption à une paire quelconque de lasers afin d'utiliser la technique classique d'absorption saturée. Une des cuves (désignée sous le nom de cuve de "référence"), ainsi que les quatre lasers, reposent sur une dalle massive de béton ( $\approx 15$  tonnes), isolée des vibrations du bâtiment par quatre cloches à air comprimé qui assurent une assiette asservie au dixième de millimètre près. La seconde cuve, (dite "grande cuve") de plus grande taille ( $L=18\text{m}$ ,  $\varnothing=70\text{ cm}$ ), destinée à obtenir une très haute résolution expérimentale est indépendante de la dalle en béton.

La Fig.2.1.3 nous rappelle les domaines spectraux que l'on peut espérer couvrir au moyen d'un laser à gaz carbonique :  $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$  et ses variétés isotopiques. En fait, ces domaines spectraux ne peuvent être balayés de façon continue qu'à l'aide de lasers en impulsion fonctionnant à plusieurs atmosphères [93].

Les lasers  $\text{CO}_2$  continus ne couvrent qu'une étroite plage d'accord autour de chaque raie de vibration-rotation de  $\text{CO}_2$ , de l'ordre de 100 MHz ( $\approx 3\text{ mK}$ ) pour les lasers conventionnels et 600 MHz ( $\approx 20\text{ mK}$ ) pour les lasers guides d'ondes [ 62 ]. Ce faible facteur de remplissage (600 MHz tous les 50 GHz ) limite fortement le nombre de coïncidences avec les transitions de vibration-rotation des molécules qui absorbent dans la région spectrale de  $10\text{ }\mu\text{m}$ . A titre d'exemple, pour  $\text{SF}_6$  nous avons observé 125 transitions sur plus de 10 000 raies observables de la bande  $\nu_3$ .

A côté de cette salle d'expérience se trouve une salle de "commande" où sont installées les alimentations électriques ainsi que toute l'électronique de traitement des signaux pilotée par ordinateur.

Par souci de simplicité, les lasers conventionnels 1 et 2 seront dénommés L1, L2, et les lasers guides d'ondes LG01 et LG02. De même, la cuve se trouvant sur la dalle en béton sera appelée cuve de "référence", et la seconde cuve "grande cuve".

---

\* Ce chapitre, rédigé en collaboration avec Ch. BREANT, fera également partie de sa thèse d'Etat [ 144 ] .

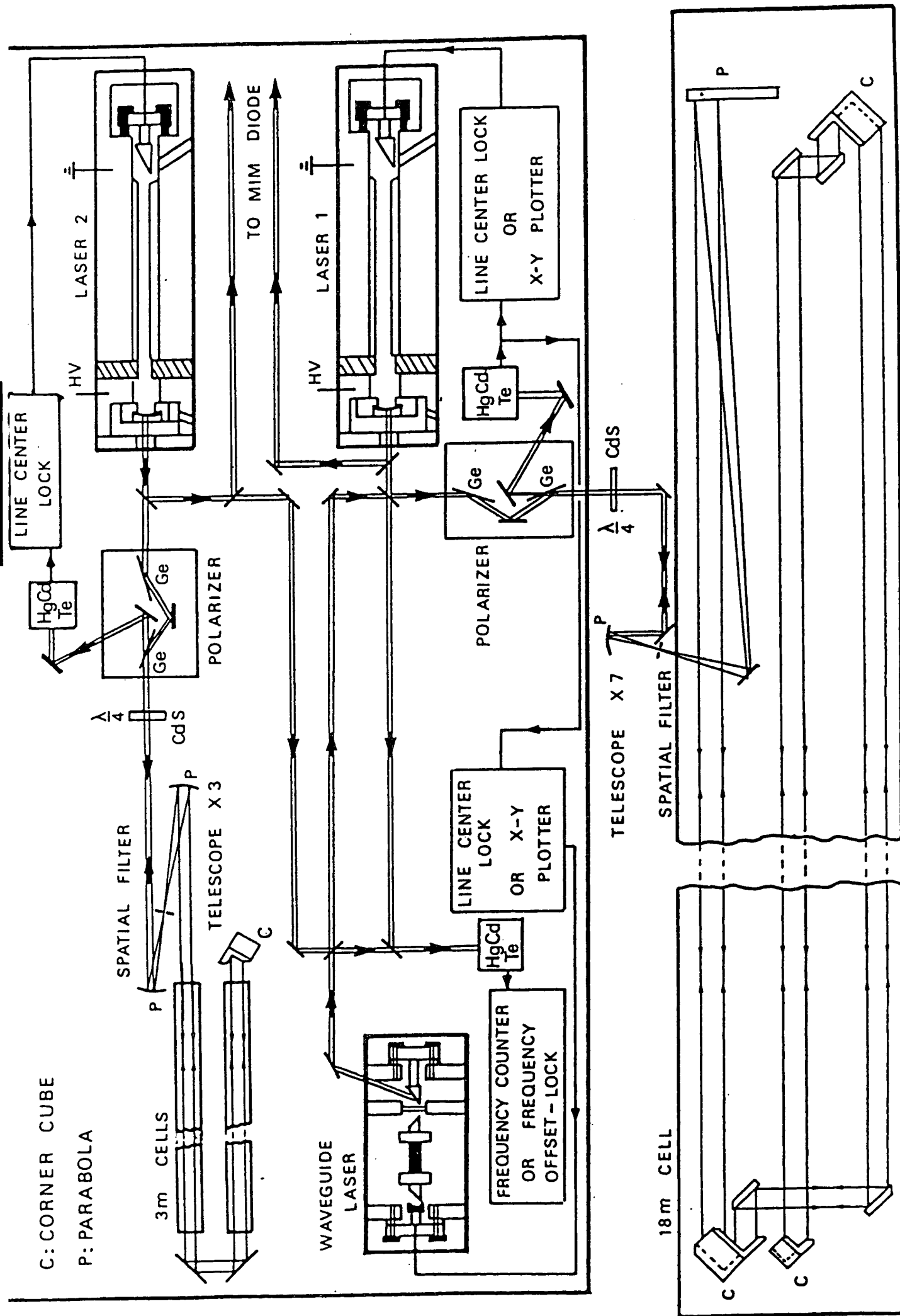
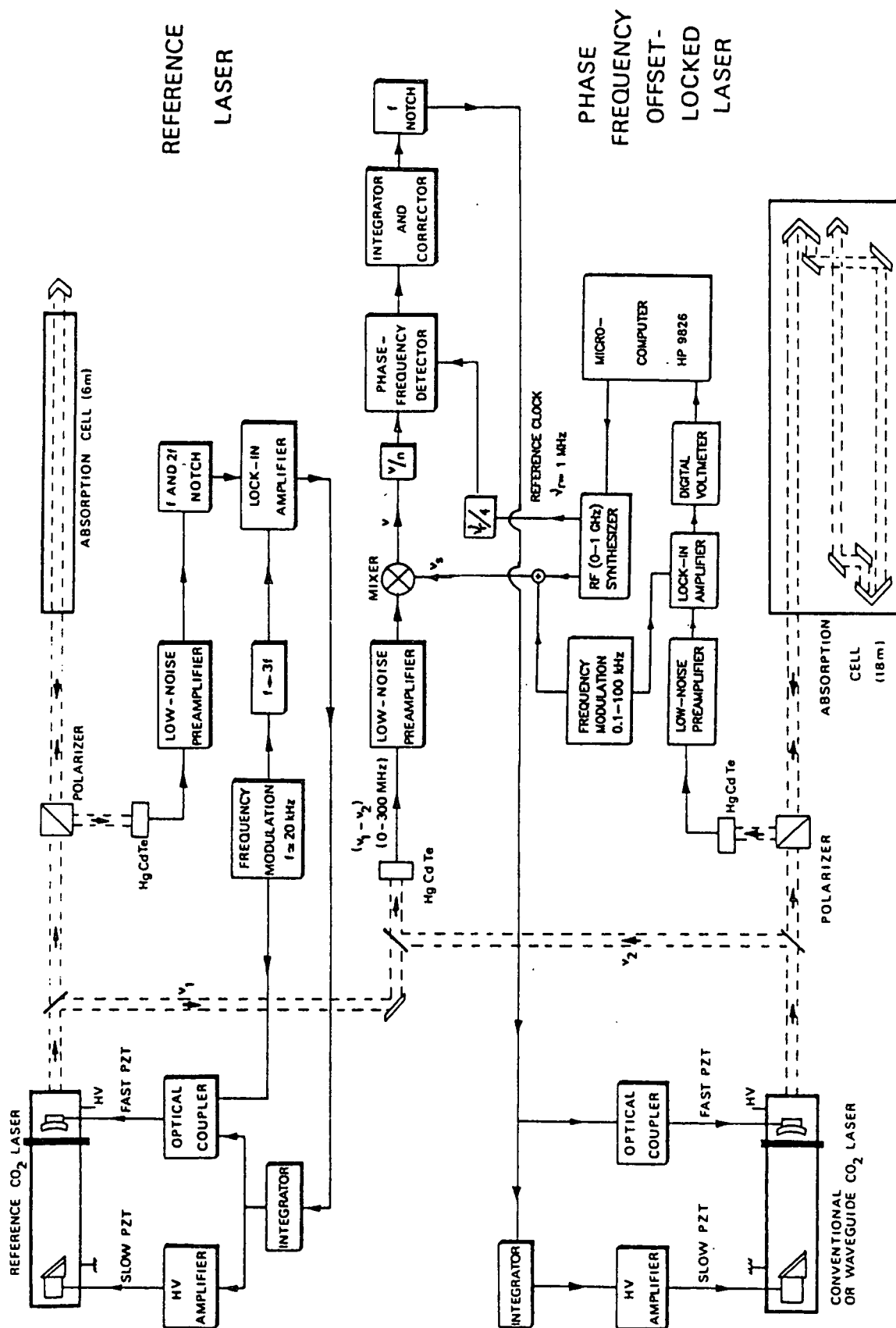


FIGURE 2.1.1 - Schéma optique général du spectromètre montrant les lasers, les cuves auxiliaires et la grande cuve d'absorption (longueur 18 m, diamètre 70 cm) ainsi que les trajets optiques (dans la grande cuve l'ouverture des éléments optiques est de 11 cm et l'écartement des faisceaux extrêmes : 54 cm).

# PHASE-FREQUENCY OFFSET-LOCKED LASER SPECTROMETER



**FIGURE 2.1.2 - Schéma électronique du spectromètre d'absorption saturée piloté par ordinateur. Le laser de référence (haut de la figure) est asservi en fréquence sur une raie de saturation et possède une pureté spectrale de l'ordre de 10 Hz. Le laser accordable (bas de la figure), conventionnel ou guide d'ondes, est décalé en fréquence par rapport au laser de référence à l'aide d'une boucle à verrouillage de phase. Cette boucle consiste à asservir en phase le batttement entre les deux lasers sur la fréquence balayable d'un synthétiseur radio-fréquence de haute pureté spectrale. La commande du synthétiseur ainsi que l'acquisition des données sont effectuées simultanément par le micro-ordinateur.**

### 2.1.2 LES DIFFERENTS MODES D'UTILISATION DU SPECTROMETRE

Comme il est indiqué sur les Fig.2.1.1 et 2.1.2, un tel spectromètre comporte deux parties associées à chacune des cuves d'absorption.

Le montage optique permet alors d'envoyer au choix un laser conventionnel ou guide d'ondes dans chacune des cuves.

L'installation peut alors être utilisée de deux manières différentes:

- Chacun des deux lasers peut être indépendamment stabilisé en fréquence, par asservissement sur une raie d'absorption saturée. L'analyse et la mesure du battement entre les deux lasers nous renseignent alors sur la stabilité de fréquence des oscillateurs (pureté spectrale, variance d'Allan). D'un point de vue spectroscopique cette technique permet également de mesurer avec précision les écarts de fréquence entre différentes raies moléculaires.

Enfin, par mélange des deux faisceaux lasers avec une source millimétrique dans une diode M.I.M. [ 36,37 ], des fréquences de battement très élevées (jusqu'à 340 GHz) ont pu être mesurées directement. Ceci nous a permis d'établir une grille d'étalons secondaires de fréquence dans la région spectrale de 10  $\mu\text{m}$ , qui sera présentée au Chapitre 3 [ 36,37 ].

- Fonctionnement en spectromètre à ultra-haute résolution. Un des lasers (dit de référence) est asservi sur une raie moléculaire, le second étant décalé en fréquence par un verrouillage en phase par rapport au laser de référence.

Comme nous allons le montrer, cette technique permet de transférer à la fois la stabilité à court terme ( $\approx 10$  Hz), et la stabilité à long terme ( $\leq 10^{-13}$ ) du laser de référence sur le laser décalé. Ceci est particulièrement intéressant dans le cas des lasers guides d'ondes, relativement bruyants en fonctionnement libre. La boucle de verrouillage de phase [ 98,31 ] consiste à asservir le battement des deux lasers sur la fréquence accordable d'un synthétiseur R.F.. A l'intérieur de la plage d'oscillation du laser décalé la fréquence de celui-ci est donc uniquement déterminée par la fréquence du laser de référence et celle du synthétiseur (0 - 1 GHz).

De la haute pureté spectrale du laser décalé en fréquence découle un très haut pouvoir de résolution pour ce spectromètre qui n'est plus limité que par la largeur de la résonance de saturation dans la grande cuve d'absorption.

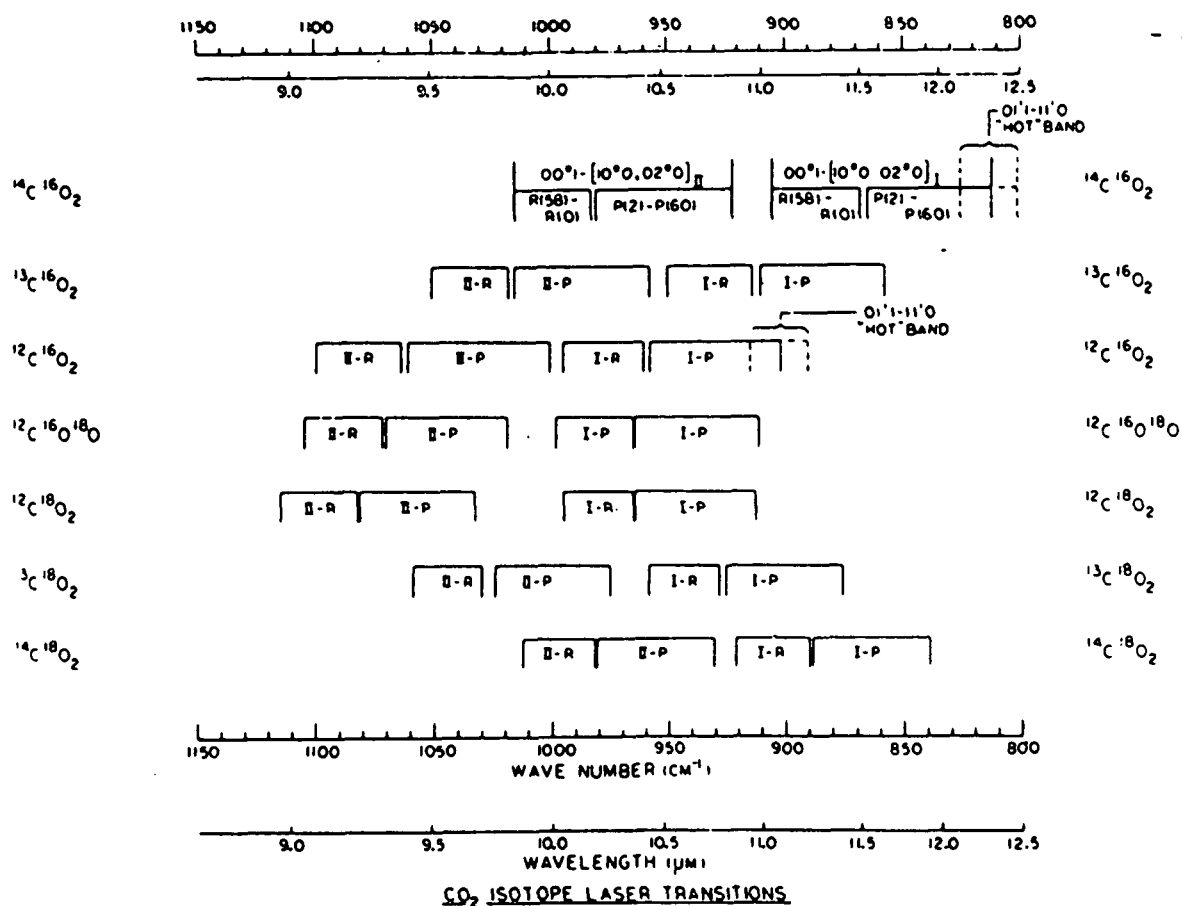


Fig. 2.1.3-Domains spectraux que permettent de couvrir les raies du laser à gaz carbonique correspondant à sept espèces isotopiques [ 92 ].

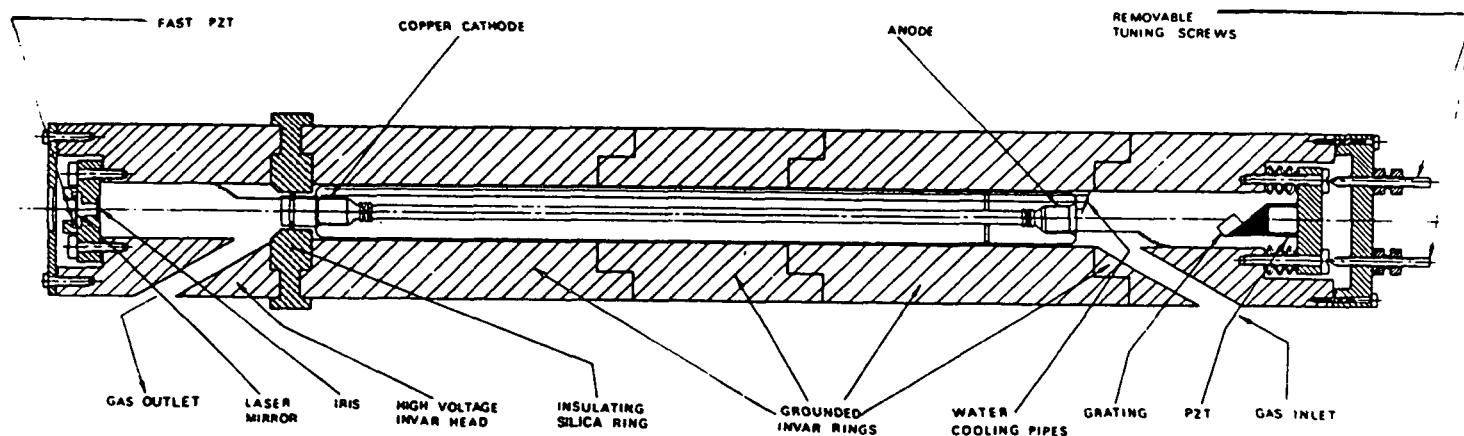


Fig. 2.2.1- Coupe longitudinale des lasers conventionnels à basse pression : la structure tubulaire est constituée de bagues encastées en invar supérieur et silice fondue. Seuls les embouts terminaux permettant l'accès aux composants optiques, aux électrodes et au tube laser sont démontables. Les canalisations d'eau sont raccordées à l'extérieur par passage étanche sur la face terminale du côté du réseau. Le réseau plan en acier aluminisé ou doré fonctionne en Littrow dans l'ordre - 1. La cavité oscille préférentiellement dans un plan de polarisation perpendiculaire aux sillons. L'angle de blaze ( $\sim 52^\circ$ ) est compensé par une cale intermédiaire en verre. Le support du réseau peut subir des rotations autour de deux axes orthogonaux, comportant des empièlements de rondelles Belleville assurant une excellente stabilité à long terme du réglage. Un iris ( $\varnothing \sim 5$  mm) est indispensable pour privilégier l'oscillation du mode TEM<sub>00</sub>. Le contrôle électronique de fréquence de ces lasers est assuré par deux céramiques piézoélectriques : une céramique sensible (100 kHz/V) poussant le réseau permet soit de balayer l'intervalle entre deux modes, soit d'apporter des corrections lentes alors qu'une céramique rapide située derrière le miroir de Germanium est utilisée pour la modulation de fréquence et les corrections rapides. Un coupleur optique assure l'isolement nécessaire entre la tête du laser et le système de commande de la céramique rapide.

A très basse pression, cette largeur dépend essentiellement des caractéristiques géométriques du faisceau (diamètre et courbure des fronts d'ondes) [40,64]. C'est pourquoi le faisceau du laser décalé est filtré spatialement et convenablement agrandi à un diamètre de 11 cm ( $w_0 = 3,6$  cm) pour sonder l'absorption dans la "grande cuve" où se trouve le gaz moléculaire à étudier à très basse pression (entre  $10^{-6}$  et quelques  $10^{-3}$  Torr).

## 2.2 DESCRIPTION DES SOURCES LASERS

### 2.2.1 LES LASERS CONVENTIONNELS L1 ET L2 (Fig. 2.2.1)

Ces lasers à basse pression (5-15 Torrs) ont été conçus pour obtenir la meilleure stabilité de fréquence possible avant même toute stabilisation électronique de fréquence [91].

Leur puissance de sortie est comprise entre quelques centaines de milliwatts et 3 watts, dans le mode Gaussien fondamental  $TEM_{00}$ . Ces lasers ne présentent aucune fenêtre de Brewster dans la cavité optique qui serait une source de fluctuation de fréquence. Cette cavité est constituée par un réseau doré présentant 150 traits par mm et permettant de sélectionner chaque raie ro-vibrationnelle de  $CO_2$ , et par un miroir en germanium. La présence du réseau détermine la polarisation de l'oscillation laser, perpendiculaire aux traits. Le miroir en germanium, face concave à l'intérieur ( $R = 4$  m,  $r = 90\%$ ) et convexe à l'extérieur ( $R = 3$  m), et traité antireflet à  $10,6 \mu m$  sert de coupleur de sortie; les rayons de courbure du miroir sont calculés pour placer le "waist" (col) du faisceau sur la face de sortie du miroir en germanium.

Ceux-ci ont été mesurés très soigneusement :

$$L1 : w_0 = 2,9 \text{ mm}$$

$$L2 : w_0 = 2,15 \text{ mm}$$

La longueur de la cavité est déterminée par un cylindre massif d'Invar supérieur ( $\alpha = -26.10^{-8}/^{\circ}C$ ) de longueur 1,1 mètre, de diamètre 15 cm, et foré intérieurement sur 5 cm de diamètre.

Le miroir en germanium, monté sur une céramique piézo-électrique rapide

(épaisseur 3mm) est préréglé et définit l'axe optique de la cavité. Seule la position angulaire du réseau est ajustable à l'aide de trois articulations sphère-cône. Celles-ci sont comprimées par un ensemble de rondelles déformables (type Belleville) à l'aide de vis commandées à travers des passages mécaniques sous vide. La stabilité mécanique de ce système est telle qu'aucun réajustement manuel du laser n'est nécessaire sur des périodes de plusieurs semaines.

Le réseau est monté sur une céramique piézo-électrique beaucoup plus longue ( $L = 30$  mm) afin de permettre un ajustement fin de la longueur de la cavité. Ceci permet de balayer la cavité sur une longueur supérieure à  $\frac{\lambda}{2}$  correspondant à l'intervalle entre modes longitudinaux de la cavité.

Un diaphragme de diamètre 6 mm assure l'oscillation de la cavité sur le mode fondamental  $TEM_{00}$ .

Le milieu amplificateur est soit un mélange  $CO_2-N_2-He$  (12,4%, 14,6%, 73%) circulant très lentement, avec un débit de l'ordre 0,3 litre/minute dans un tube à décharge coaxial en pyrex (diamètre 8mm), soit un mélange  $N_2O-N_2-He$  (10,8%, 29,3%, 59,9%) circulant avec un débit légèrement supérieur.

Le refroidissement est assuré dans une double enveloppe par une circulation d'eau thermostatée, en circuit fermé, et de très faible débit ( $\leq 0,2$  litre par minute), de façon à introduire le minimum de vibrations dans la structure laser.

Un anneau en silice fondue isole la tête du laser portée à la haute tension (4 kV) en vue d'obtenir une décharge continue entre la cathode en cuivre et l'anode en nickel. Le courant de décharge (15-30 mA suivant les raies laser) est fourni par une alimentation H.T. (SIEMEL) régulée en tension à quelques  $10^{-6}$  près, à travers une résistance Ballast comprise entre 235 et 400 k $\Omega$  pour les lasers  $CO_2$  et  $N_2O$ . L'état de la cathode, constituée d'un cylindre coaxial de cuivre joue un rôle important sur la stabilité en fréquence du laser libre : son état de surface est périodiquement (tous les 6 mois environ) rendu extrêmement lisse par polissage très doux. Le cuivre s'est avéré être le meilleur matériau pour ces cathodes; ces lasers sont isolés des perturbations acoustiques de l'environnement par des enceintes d'insonorisation composites, démontables, spécialement étudiées.



Une porte amovible autorise l'accès aux réglages du réseau et le faisceau laser sort par une longue cheminée afin de réduire au minimum le bruit à l'intérieur du capot. Le matériau retenu pour la construction de ce capot se compose d'une tôle extérieure d'acier (2 mm) et d'un complexe insonorisant en laine minérale d'épaisseur 60 mm revêtue d'un voile de verre auquel est associée une feuille de plomb d'épaisseur 1,5 mm.

L'examen du tableau 2.1 montre le faible gain des capots aux basses fréquences; jusqu'à 100 Hz la réduction du bruit n'atteint que 12 dB. Un gain supérieur aurait nécessité une épaisseur de plomb considérable. Par contre, aux fréquences supérieures à 500 Hz (les fréquences de résonance de la structure laser se situent entre 800 Hz et 1,2 kHz), l'atténuation est d'au moins 30 dB (jusqu'à 38 dB) et par conséquent assure une isolation acoustique importante.

Cette isolation acoustique a eu deux conséquences :

- réduction du bruit d'amplitude et de fréquence présent sur le rayonnement laser lui-même;

- les décrochages intempestifs des boucles d'asservissement provoqués par des perturbations extérieures (claquage des portes, passages de voitures, trains, avions, etc...), ont totalement disparu. L'informatisation de l'expérience et la prise de données sur des temps longs en ont été grandement facilitées.

TABLEAU 2.1

ATTENUATION ACOUSTIQUE DES CAPOTS DES LASERS L1 ET L2

Fréquences (Hz)	Valeurs moyennes des niveaux de pression in situ (dB)	Atténuation due à l'isolation (dB)		
		Isolation annoncée par FRANCISOL	Réalisation Laser L1	Réalisation Laser L2
63	56	13	13	12
125	55	23	12	11
250	45	29	21	18
500	40	31	33	30
1 k	36	35	36	38
2 k	32	37	29	33
4 k	32	38	28	33
8 k	26	40	29	38

### 2.2.2 LES LASERS GUIDES D'ONDES LG01 et LG02 (Fig. 2.2.2)

Les lasers guides d'ondes utilisent la propagation guidée de la lumière dans un guide diélectrique creux pour réduire le diamètre du tube amplificateur et assurer un bon refroidissement du milieu. Ceci permet un fonctionnement à pression élevée et donc un élargissement de la plage d'oscillation par rapport aux lasers conventionnels [62,65,94]. Pour les lasers guides d'ondes continus, cette plage peut actuellement atteindre 1 GHz autour de chaque raie de ro-vibration de  $\text{CO}_2$  [ 66 ].

Nous avons déjà décrit ces lasers en détail [62, 29, 95 ]. Nous nous bornerons ici à en résumer les caractéristiques essentielles et à mentionner les apports les plus récents.

Le tube amplificateur est construit à partir de quatre plaques d'oxyde de béryllium polies et collées ensemble de façon à constituer un guide creux carré, de 1,5 mm. de côté.

L'oxyde de béryllium présente une excellente conductivité thermique pour le refroidissement du milieu amplificateur et de faibles pertes diélectriques dans la région spectrale de 10  $\mu\text{m}$ . Ce refroidissement est assuré par un réservoir en cuivre où circule de l'eau thermostatée.

Ces plaques sont percées pour permettre l'entrée et la sortie du mélange gazeux (12,4 %, 14,6 %, 73,0 % de  $\text{CO}_2$ ,  $\text{N}_2$ , He), ainsi que le passage des électrodes assurant la décharge continue haute tension sur deux fois 5 cm de longueur.

La pression moyenne de fonctionnement est comprise entre 40 et 100 Torr.

Deux fenêtres à l'incidence de Brewster, en ZnSe, supportées par deux pièces en stéatite constituent les extrémités du guide. L'arrivée du mélange gazeux se fait par les extrémités. Le pompage central évite la détérioration des fenêtres. Le débit gazeux est beaucoup plus élevé que dans le cas des lasers conventionnels : de l'ordre de 2 litres/minute.

Une alimentation stabilisée à quelques  $10^{-4}$  fournit un courant de 2-3 mA à travers deux résistances ballasts de 1 M $\Omega$ ; la tension aux bornes de la décharge est de l'ordre de 5 à 6 KVolts.

Le résonateur optique est constitué d'un miroir sphérique de rayon de courbure  $R = 120$  mm, centré à l'entrée du guide, et d'un réseau (150 traits par mm) illuminé par une lentille anti-reflets en ZnSe de focale  $f = 60$  mm. Ce dernier permet de sélectionner la plupart des raies de vibration-rotation

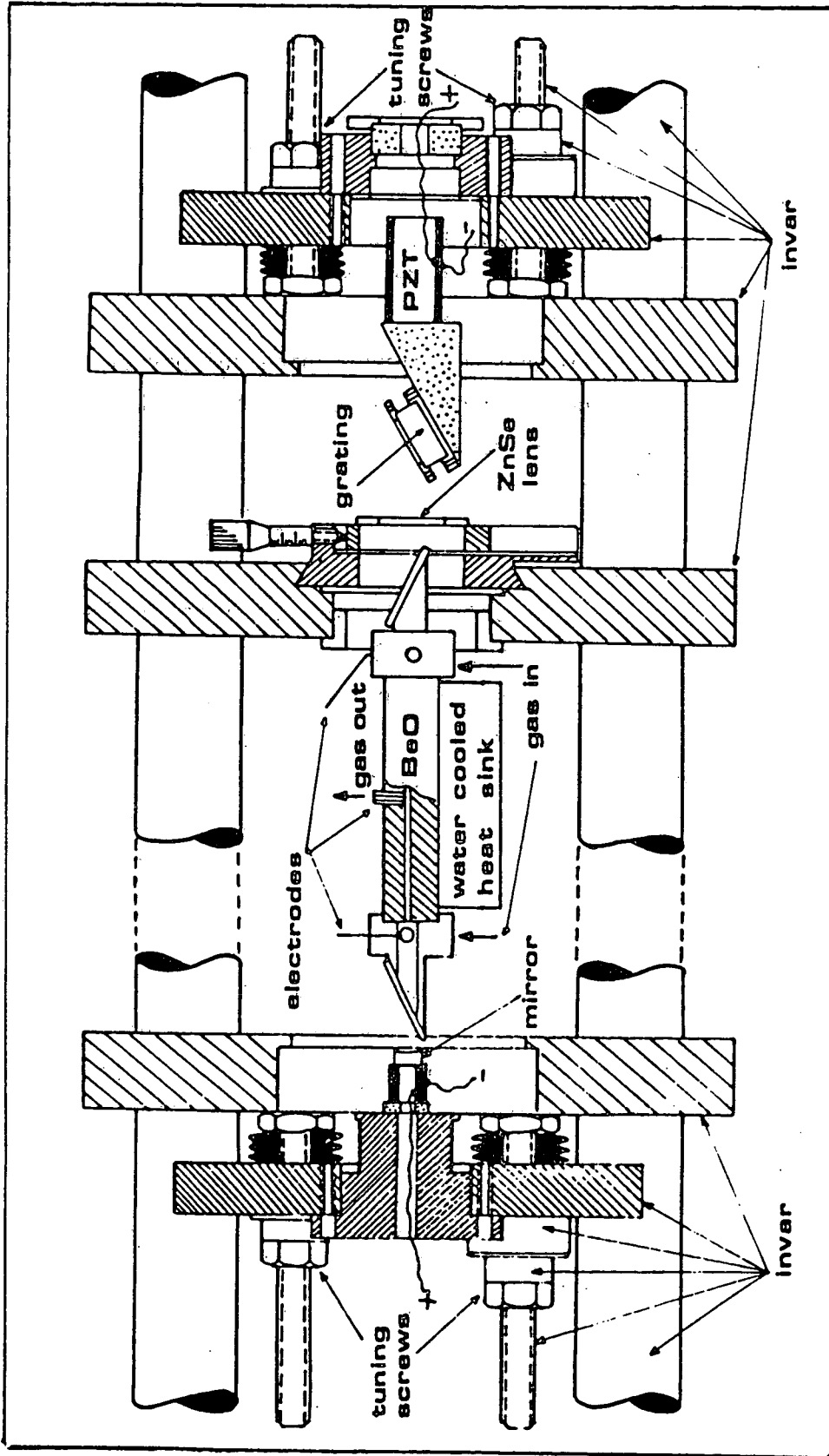


Fig. 2.2.2 — Schéma d'un laser guide d'ondes : le tube amplificateur est construit à partir de plaques d'oxyde de beryllium polies et collées ensemble de façon à constituer un guide creux carré de 1,5 mm de côté. A chaque extrémité du guide des embouts de stéatite servent de supports aux fenêtres de Brewster en ZnSe. Le gaz (mélange 12,4 %, 14,6 %, 73 % de  $\text{CO}_2$ ,  $\text{N}_2$ , He) pénètre dans le tube par ces embouts, et est pompé à travers un tube de cuivre au centre du guide. La pression moyenne dans le tube est de l'ordre de 100 Torr. Le tube de cuivre est utilisé comme cathode et deux pointes de tungstène traversant les embouts de stéatite servent d'anodes. Une alimentation stabilisée établit un courant de décharge de l'ordre de 2 mA, avec une chute de tension de l'ordre de 5 kV pour chaque demi-tube monté en série avec une résistance ballast de 1 M $\Omega$ . La chaleur est évacuée par un bloc de cuivre en contact thermique avec le guide, et refroidi par une circulation d'eau à température régulée. La cavité optique est constituée par un miroir sphérique ( $R = 120$  mm), centré sur l'entrée du guide et un réseau (150 traits/mm) éclairé dans le premier ordre par une lentille de ZnSe ( $f = 6$  cm) placée à 6 cm du guide. Deux céramiques piézoélectriques, respectivement derrière le miroir et le réseau, permettent le contrôle de fréquence du laser. La lumière est extraite dans l'ordre zéro du réseau [ 62 ]

des bandes à  $10,4\ \mu\text{m}$  et  $9,4\ \mu\text{m}$  de  $\text{CO}_2$  avec des puissances de sortie comprises entre quelques centaines de milliwatts et 1 watt.

Une céramique piézo-électrique supporte le réseau et permet de piloter la longueur de la cavité qui fait environ 27,5 cm, en vue du balayage en fréquence des 550 MHz de plage que permet de couvrir ce type de laser. Elle sert également à compenser les fluctuations lentes de fréquence lorsque la fréquence du laser est stabilisée électroniquement.

Le miroir sphérique est supporté par une céramique rapide qui permet d'une part de compenser les fluctuations rapides de fréquence, et d'autre part, de moduler la fréquence du laser jusqu'à des valeurs pouvant atteindre 150 kHz.

L'ensemble est fixé sur des plaques en Invar, reliées entre elles par quatre barreaux en Invar, et isolé des vibrations acoustiques et des courants d'air par de la mousse synthétique.

L'intervalle entre modes longitudinaux est de 550 MHz. La plage de fréquence sur laquelle le gain moléculaire l'emporte sur les pertes est adaptée à cet intervalle spectral et dépasse 550 MHz sur les raies de fort gain.

Le laser guide d'ondes LG02 présente une partie amplificatrice de longueur double (20 cm). Sa puissance de sortie peut dépasser 1,5 Watt. Ce laser s'est montré très utile pour obtenir l'effet laser sur des raies de faible gain (voir les résultats sur l'ammoniac au paragraphe 3.5) ou bien encore lorsque la puissance de sortie jouait un rôle prépondérant : la stabilisation en fréquence sur la fluorescence saturée de  $\text{CO}_2$  décrite en [ 67 ] et [ 29 ], en est un exemple. Le même laser nous a également permis d'obtenir plus de 200 MHz de plage d'oscillation avec le milieu amplificateur constitué de  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{N}_2$ , He. Les trois composantes de la transition P(3) de la bande  $\nu_3$  de  $\text{SF}_6$  ont ainsi pu être observées pour la première fois et sont présentées sur la figure 2. 2.3 .

### 2.2.3 STABILITE DES LASERS LIBRES (CONVENTIONNEL OU GUIDE D'ONDES)

La structure rigide en Invar supérieur confère à ces lasers une excellente stabilité mécanique.

#### 2.2.3.1 Les lasers à $\text{CO}_2$

- Dans le cas du laser à  $\text{CO}_2$ , la stabilité en amplitude est de l'ordre de  $10^{-3}$  pour des temps d'intégration d'une seconde, et le spectre de bruit

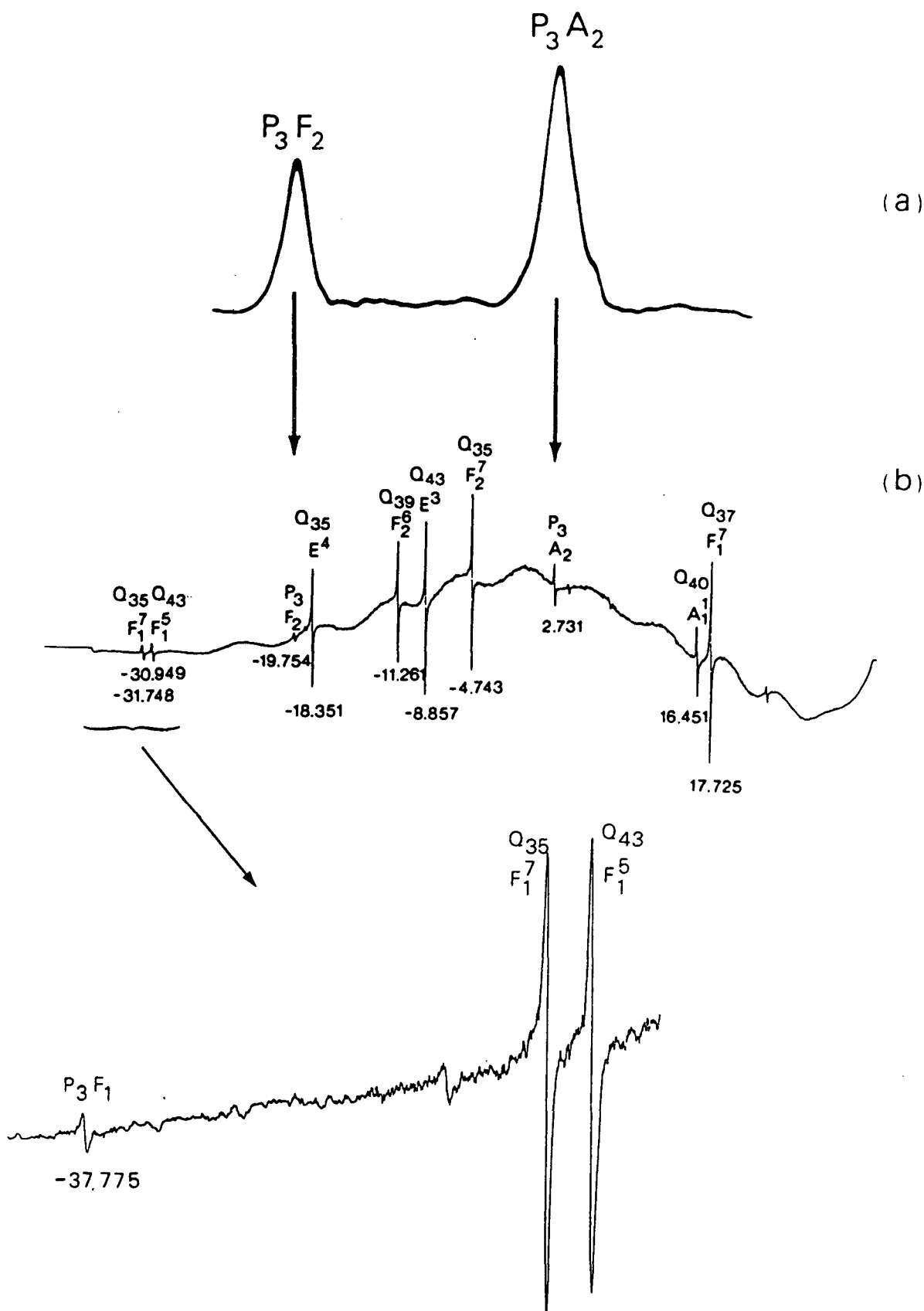


FIGURE 2.2.3

Spectres de  $\text{SF}_6$  obtenus avec la raie R(10) du laser à  $\text{N}_2\text{O}$  présentant en particulier les trois composantes de la transition  $P_3$  (par simple balayage du laser libre) [153] : (a) signal du bolomètre placé sur un jet supersonique de  $\text{SF}_6$ ensemencé à 7% dans de l'hélium; (b) signal d'absorption saturée correspondant à une cuve à température ambiante. Les fréquences sont données en MHz à partir du centre de la raie de  $\text{N}_2\text{O}$ .

d'amplitude est limité à des fréquences inférieures à 10-20kHz pour les lasers conventionnels. Pour les lasers guides d'ondes, le spectre de bruit d'amplitude s'étend jusqu'à une trentaine de kilohertz.

- La stabilité en fréquence peut être évaluée à partir du signal de battement entre deux des lasers. Ce battement est caractérisé soit par la mesure de la variance d'Allan (Appendice C), soit directement grâce à un analyseur de spectre qui fournit la transformée de Fourier de ce signal.

- Pour les lasers conventionnels libres, l'analyseur de spectre indique une pureté spectrale meilleure que 300 Hz pour un temps d'intégration d'une seconde. Cette valeur est confirmée par la mesure de la variance d'Allan (Fig. 2.2.4(a)) aux temps courts. La variance pour les temps compris entre 20 et 100 ms est sensiblement horizontale au niveau de  $2 \times 10^{-12}$  (soit  $\sim 60$  Hz). Pour les temps supérieurs à 100 ms, la pente +1 de la variance d'Allan (en coordonnées logarithmiques) est caractéristique des dérives linéaires de fréquence du laser libre, de l'ordre de quelques kilohertz par minute.

- La pureté spectrale à court terme du laser guide d'ondes libre (Fig. 2.2.4 (b)) est de l'ordre de quelques kHz. Pour des temps supérieurs à 10 ms la variance d'Allan croît avec une pente égale à 1, ce qui reflète de larges fluctuations de fréquences (de l'ordre de la centaine de kilohertz par minute) dues à la structure même du laser guide d'ondes (fenêtre de Brewster, lentille de focalisation à la sortie du guide, ...).

Nous verrons cependant, au paragraphe 2.3 qu'il est possible de stabiliser ces lasers en fréquence au niveau de la dizaine de Hertz tout en conservant leur plage d'accordabilité.

#### 2.2.3.2 Lasers à $N_2O$

Dans le cas des lasers à  $N_2O$  conventionnels, le bruit d'amplitude dû à la décharge est beaucoup plus critique. Il est alors nécessaire d'augmenter le débit des gaz, la résistance "Ballast" en série, et d'optimiser très soigneusement le courant de décharge (15 mA). Après optimisation de ces divers paramètres, ce type de laser présente cependant un spectre de bruit d'amplitude beaucoup plus étendu ( $\geq 50$  kHz).

Le bruit de fréquence des lasers à  $N_2O$  conventionnels est également plus important que celui des lasers à  $CO_2$ . La figure 2.2.5 présente la variance d'Allan d'un laser à  $N_2O$  conventionnel libre. Cette variance met en

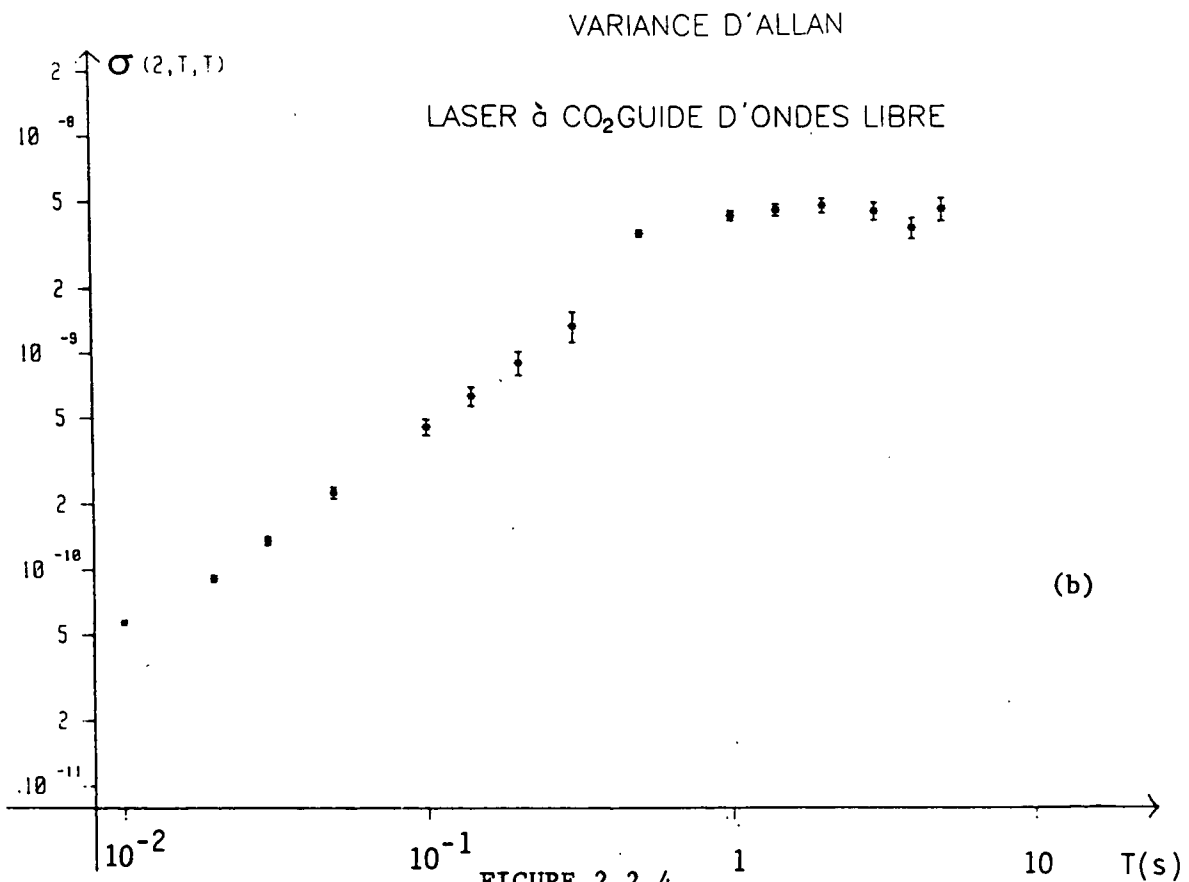
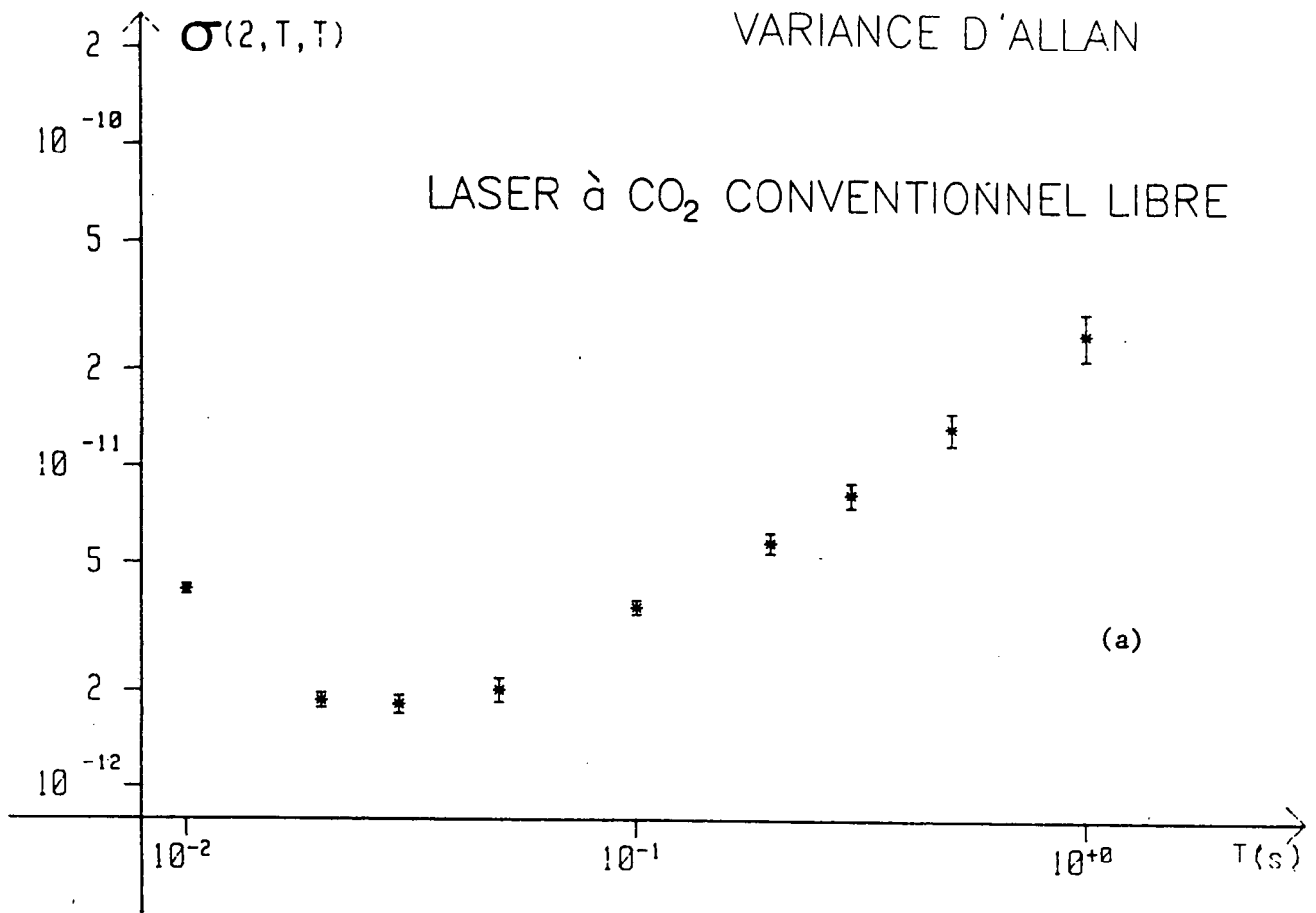


FIGURE 2.2.4

Variance des lasers à CO<sub>2</sub> libres



# VARIANCE D'ALLAN

## LASER à N<sub>2</sub>O CONVENTIONNEL LIBRE

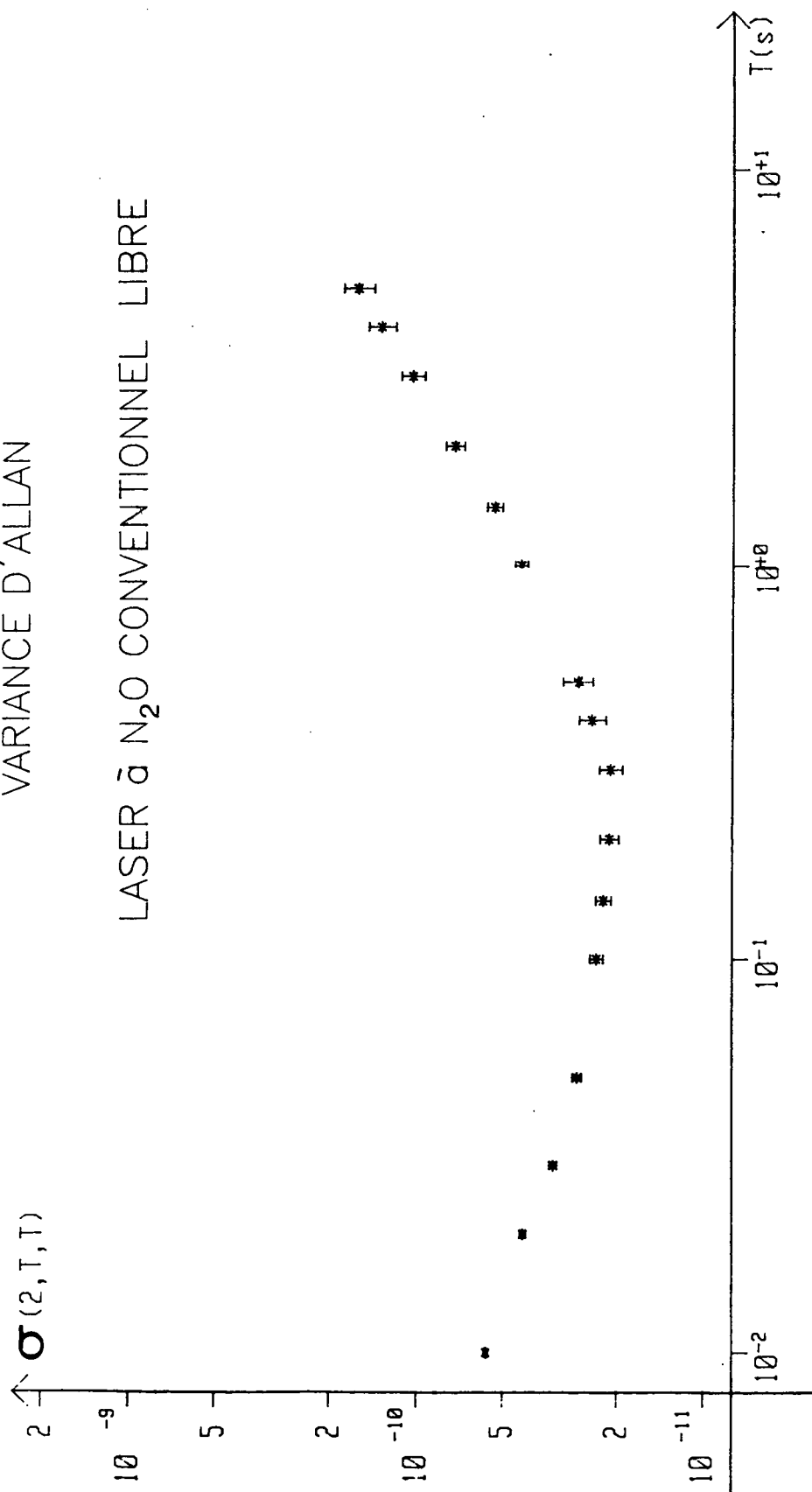


FIGURE 2.2.5

Variance d'un laser à N<sub>2</sub>O conventionnel libre

évidence une pureté spectrale à court terme de quelques kilohertz, et présente un palier, pour des temps voisins de 100 ms, aux alentours de  $3 \times 10^{-11}$ , soit 1 kHz. Pour les temps plus courts, la variance remonte légèrement, avec une pente - 1/2 caractéristique d'un bruit blanc de fréquence.

## 2.3 STABILISATION EN FRÉQUENCE D'UN LASER A CO<sub>2</sub> (OU N<sub>2</sub>O)

### 2.3.1 PRESENTATION GENERALE

Obtenir la plus haute pureté spectrale possible nécessite un grand soin, aussi bien dans la partie optique que dans la partie électronique de la boucle d'asservissement; il s'agit en effet d'obtenir le meilleur rapport signal sur bruit possible sur une raie de saturation de largeur la plus étroite possible.

La théorie des formes de raies de saturation est maintenant bien comprise [40,64,68]. Nous disposons d'une forme de raie en champ laser faible tenant compte de la géométrie des faisceaux lasers, de l'effet de recul, de l'effet Doppler du second ordre, des collisions, et de la modulation de fréquence du faisceau laser [ 68 ].

En champ laser fort, seules des méthodes numériques permettent d'étudier simultanément l'élargissement par saturation en présence de faisceaux gaussiens et incluant la courbure des fronts d'ondes. Le programme SHAPE [ 40, 29 ] a donné de nombreux résultats réalistes à ce sujet. Enfin, lorsque l'élargissement dû au temps de vol peut être négligé, il a été possible d'introduire la structure gaussienne du faisceau laser dans les calculs en

ondes planes dans l'approximation REA et d'obtenir des expressions analytiques pour la forme de raie [29]. Ces expressions ont récemment été confirmées par A. CLAIRON dans des expériences d'absorption saturée à  $10\text{ }\mu\text{m}$  sur la molécule  $\text{OsO}_4$  [69].

D'autre part, il n'est pas question de passer ici en revue toutes les techniques de détection ultra-sensibles qui ont été mises au point au Laboratoire et ailleurs (détection hétérodyne à haute fréquence, utilisation de modulateurs électro-optiques ou acousto-optiques, transfert de modulation du faisceau saturant sur le faisceau sonde, etc... [71-74]). Le lecteur trouvera dans la référence [70] une revue de ces différentes techniques.

La stabilisation en fréquence d'un laser peut être réalisée à l'aide d'une raie de saturation détectée par modulation de fréquence du rayonnement laser. Les lasers à  $\text{CO}_2$  conventionnels réalisés au Laboratoire présentent un spectre de bruit d'amplitude qui ne s'étend pas au-delà d'une vingtaine de kilohertz. Dès lors, l'utilisation d'une fréquence de modulation supérieure à 20 kHz permet d'atteindre, dans certaines conditions, la limite de détectivité imposée par le bruit de photons. De telles fréquences de modulation ( $\leq 100\text{ kHz}$ ) sont commodément produites par des céramiques piézo-électriques faiblement chargées.

Un contrôle poussé des caractéristiques optiques du faisceau (planéité des fronts d'onde, filtrage spatial) et des caractéristiques électroniques du signal d'erreur nous a conduit à un rapport signal sur bruit de l'ordre de 500 000 dans 1 Hz de bande passante, avec les molécules  $\text{OsO}_4$  et  $\text{SF}_6$ . Ceci a permis une stabilisation de la fréquence d'émission du laser meilleure que la dizaine de Hertz [31].

Nous allons maintenant décrire le système dit "de référence" composé du laser L2 et de la cuve située sur la dalle.

Il va de soi que l'étude est également applicable à n'importe quel ensemble composé d'un laser (L1, L2, LG01, LG02) et d'une cuve (cuve de référence ou grande cuve).

Seuls, les paramètres propres du laser (puissance, géométrie du faisceau, polarisation) et de la cuve (optique utilisée, longueur de cuve), diffèrent d'un système à l'autre.

## 2.3.2 MONTAGE OPTIQUE DE LA BOUCLE DE REFERENCE

### 2.3.2.1 Caractéristiques du faisceau laser L2

Ce faisceau laser fournit couramment 2 watts, et sa polarisation est rectiligne, verticale (perpendiculaire aux traits du réseau).

Dans la configuration plan-convexe de notre cavité, le "waist", ou rayon minimum  $w_0$  du mode  $TEM_{00}$  est situé sur le miroir plan (réseau) et vaut :

$$w_0 = \left(\frac{\lambda}{\pi}\right)^{1/2} \left[ L_c (R_- - L_c) \right]^{1/4} \quad (2.1)$$

Avec  $L_c$ , longueur de la cavité  $L_c = 1m$ ,  $R_-$ , rayon de courbure interne du miroir de germanium  $R_- = 4m$ , et  $\lambda = 10,6 \mu m$ , on trouve  $w_0 = 2,4 mm$ .

Sur la face interne du miroir de germanium  $R_1 = R_- = 4m$  et  $w_1$  est donné par :

$$w_1 = \left(\frac{\lambda}{\pi}\right)^{1/2} R_1^{1/2} \left( \frac{L_c}{R_1 - L_c} \right)^{1/4} = 2,8 mm \quad (2.2)$$

La courbure  $1/R_+$  de la face externe du miroir de germanium a été choisie de façon à localiser le waist  $w'_0$  du faisceau de sortie, sur la face externe du miroir en germanium, par la relation :

$$R_+ = \frac{n-1}{n} R_-$$

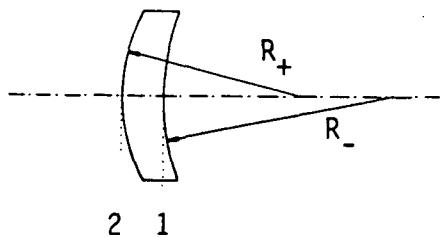


FIGURE 2.3.1

où  $n$  est l'indice du germanium,  $n = 4,0028$ .

Avec  $R_- = 4 m$ ,  $R_+ = 3 m$ , on obtient  $R'_0 = \infty$  : le waist est situé sur la face externe du miroir de sortie et vaut  $w'_0 = 2,8 mm$  (voir Fig. 2.3.1) [91].

A l'aide d'un détecteur mobile, nous avons enregistré à plusieurs distances les profils verticaux et horizontaux du mode d'émission de L2; ces profils se sont avérés notablement non gaussiens, et sont représentés sur la Fig. 2.3.2. La diffraction sur le diaphragme de diamètre 6 mm situé dans la cavité laser, nécessaire pour assurer l'oscillation sur le mode fondamental, est responsable de ces distorsions.

A partir des valeurs  $w_1$  et  $w_2$  des rayons où la puissance est réduite à  $\frac{1}{e^2}$  de sa valeur maximale, mesurées à deux distances différentes, il est possible, à l'aide des formules de faisceaux gaussiens, de remonter à la position et à la valeur du waist réel  $w_0$ . La valeur trouvée est 2,15 mm à comparer à la valeur théorique 2,8 mm qui ne prend pas en compte la présence du diaphragme dans la cavité.

Un filtrage spatial est apparu alors indispensable. La figure 2.3.3 montre les profils horizontaux du faisceau laser obtenus à deux distances, respectivement 2,5 et 12,5 mètres, après filtrage spatial par un trou d'épingle en zérodur de diamètre 680  $\mu\text{m}$  placé au foyer commun des deux miroirs du télescope, de distances focales respectives 0,27 et 0,9 mètre.

Un trou d'épingle original a été fabriqué à cet effet. Le rayonnement à 10  $\mu\text{m}$  est en effet très bien réfléchi par les métaux et les premiers "pin-hole" utilisés en dural ou laiton, bien qu'ayant une forme conique réfléchissaient beaucoup de lumière vers le laser. Le zérodur absorbe très bien l'infrarouge, tout en subissant des dilatations thermiques extrêmement faibles ( $\alpha = -6.10^{-8}/^\circ\text{C}$ ).

Le trou d'épingle a été obtenu par forage et polissage de deux cavités sphériques symétriques, de courbure telle qu'aucun rayon lumineux réfléchi une ou deux fois sur les bords du trou ne puisse revenir exactement dans l'axe de la lumière incidente.

On a résumé sur la figure 2.3.4 les paramètres taille et courbure du faisceau aux divers points du montage optique.

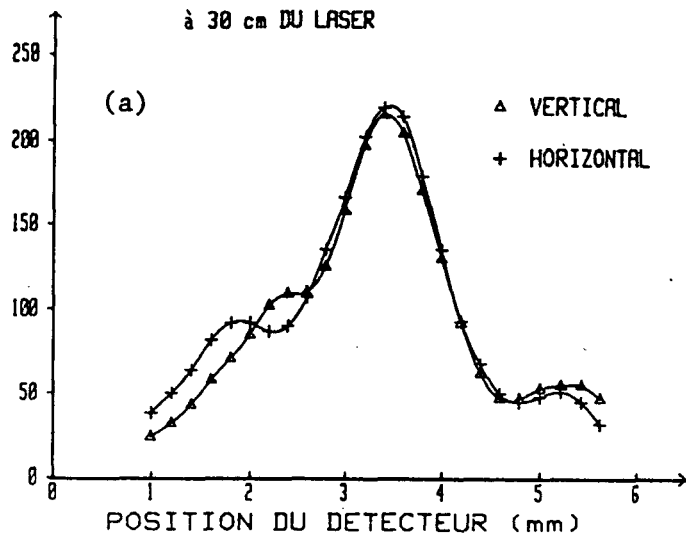
La taille du faisceau dans la cuve de référence est alors 2,8 cm pour 2w et le rayon de courbure associé est supérieur à 50 mètres.

#### 2.3.2.2 La cuve d'absorption de référence

La cuve de référence est composée de deux cuves d'absorption, identiques, de longueur 3 mètres et de diamètre 15 cm, en acier inoxydable, fermées par des fenêtres en ZnSe de diamètre 50 mm, traitées anti-reflets à 10,6  $\mu\text{m}$  et dont la planéité est meilleure que  $\lambda/2$  dans le visible, soit  $\lambda/30$  à 10  $\mu\text{m}$ .

Un coin de cube rétroréfecteur creux doré, d'ouverture 80 mm, centré sur le faisceau, réfléchit la lumière sur elle-même et permet d'obtenir une onde stationnaire de très bonne qualité. Ce coin de cube est constitué de trois miroirs plans en Borosilicate, polis à  $\lambda/10$  dans le visible puis contactés optiquement avant dorure. Nous l'avons testé dans l'interféromètre à

## PROFIL DU FAISCEAU LASER L2



## PROFIL DU FAISCEAU LASER L2

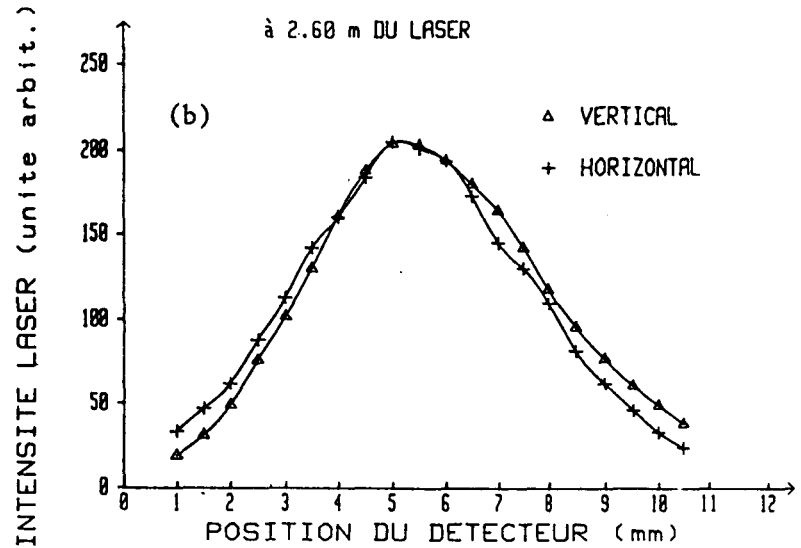


Fig. 2.3.2 - Profils verticaux et horizontaux du mode d'émission du laser L2, enregistrés : (a) à 30 cm de la sortie du laser, (b) à 2,6 m de la sortie du laser. Ces enregistrements ont été réalisés à l'aide d'un détecteur mobile de petite taille ( $250 \mu\text{m} \times 250 \mu\text{m}$ ).

## PROFIL HORIZONTAL DU FAISCEAU LASER L2

APRES TELESCOPE ET FILTRE SPATIAL

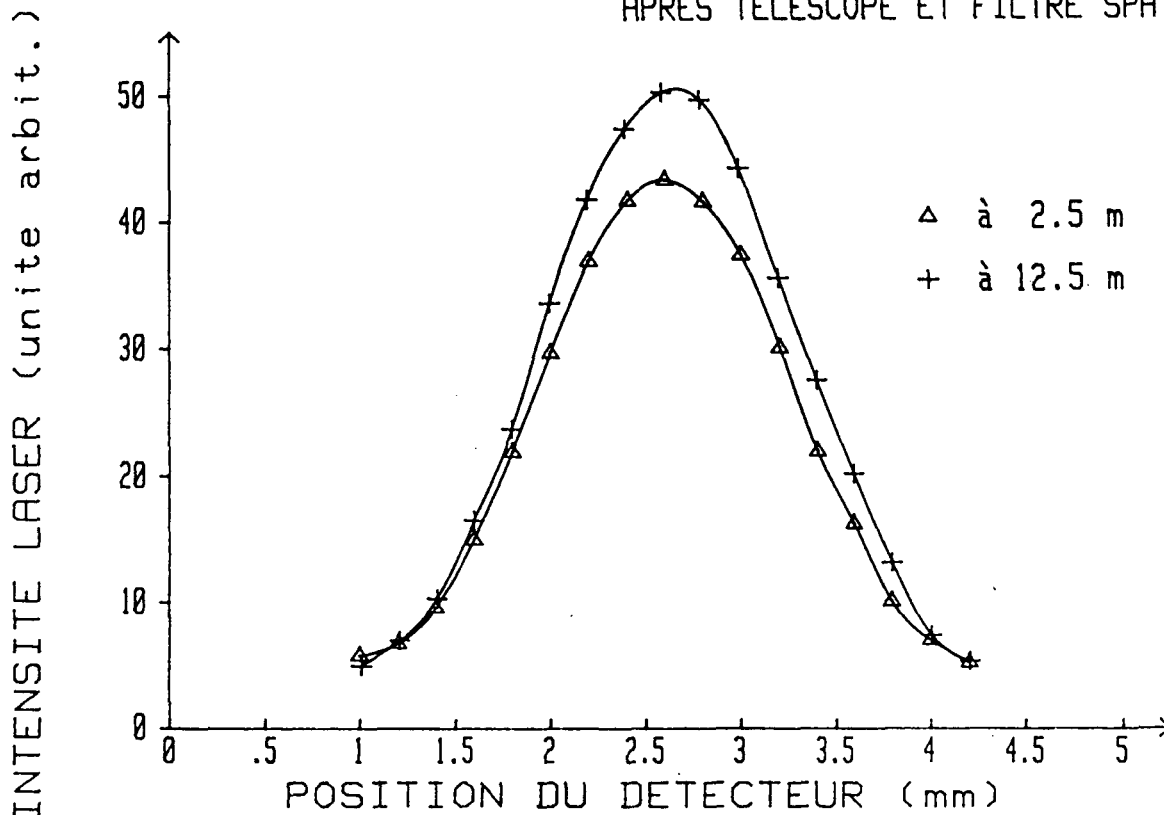


Fig. 2.3.3 - Profil horizontal du mode d'émission du laser L2, après filtrage spatial. Le filtre spatial (diamètre  $680 \mu\text{m}$ ) est situé au point focal du télescope. Le profil a été enregistré à 2,5 m et 12,5 m après le télescope.

faisceaux agrandis décrit au paragraphe 2.6.1 et les angles au sommet sont rigoureusement droits à la précision d'une à deux secondes d'arc.

### 2.3.2.3 Détection des signaux optiques

L'onde rétroréfléchie provenant de la réflexion sur le coin de cube est détectée grâce à un système de polariseur et de lame quart d'onde.

Nous utilisons un polariseur en réflexion (voir figure 2.3.5 ) constitué de deux lames de germanium, non traitées, orientées à l'incidence de Brewster ( $76^\circ$ ).

Le faisceau rétroréfléchi vers le polariseur a alors subi deux passages à travers une lame quart d'onde ( $\lambda/4$ ) en CdS dont les axes neutres sont situés à  $45^\circ$  de la verticale. Cet ensemble polariseur et lame  $\lambda/4$  sert alors de système anti-retour vers le laser et transmet totalement le faisceau rétroréfléchi à travers la lame de germanium n°2, placée à l'angle de Brewster. Le faisceau retour est ensuite focalisé sur un cristal HgCdTe refroidi à 77 K qui détecte l'absorption dans la cuve de référence. La puissance de sortie du laser étant de quelques watts et les conditions optimales d'intensité pour observer l'absorption saturée étant comprises entre  $1\mu\text{W}$  et quelques mW selon les situations expérimentales (pression du gaz, indice de modulation, etc..), nous utilisons la transmission à travers des lames de fluorine polies à  $\lambda/4$  dans le visible pour atténuer l'intensité du faisceau laser. L'ensemble de ces atténuateurs et le polariseur assurent un coefficient d'extinction de la lumière rétroréfléchie vers le laser de l'ordre de  $10^6$ . Un tel facteur d'extinction est nécessaire pour éviter que des franges d'interférences parasites ne viennent moduler la puissance de sortie du laser. Ces franges affectent considérablement la stabilité de fréquence à moyen et long terme ( $\geq 1\text{s}$ ) du laser asservi, par les variations du fond sur lequel apparaît la résonance de saturation nécessaire au verrouillage en fréquence du laser.

Les détecteurs utilisés dans nos expériences (type SAT) sont des cristaux de  $\text{Hg}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$  refroidis à la température de l'azote liquide (77 K). Les cristaux sont de petite taille ( $250\mu\text{m} \times 250\mu\text{m}$ ), présentent une détectivité remarquable ( $D^* = 4,3 \times 10^{10} \text{ cm W}^{-1} \cdot \text{Hz}^{1/2}$ ) et une bande passante de plusieurs centaines de Mégahertz. Pour chacune des cuves d'absorption, la courbe d'étalonnage de l'ensemble détecteur-préamplificateur est donnée figure 2.3.6 .

Au-delà du détecteur, débute le traitement électronique des signaux, qui va être développé dans la partie 2.3.4 : "Montage électronique".

## CARACTERISTIQUES GEOMETRIQUES DU FAISCEAU DE REFERENCE (L2)

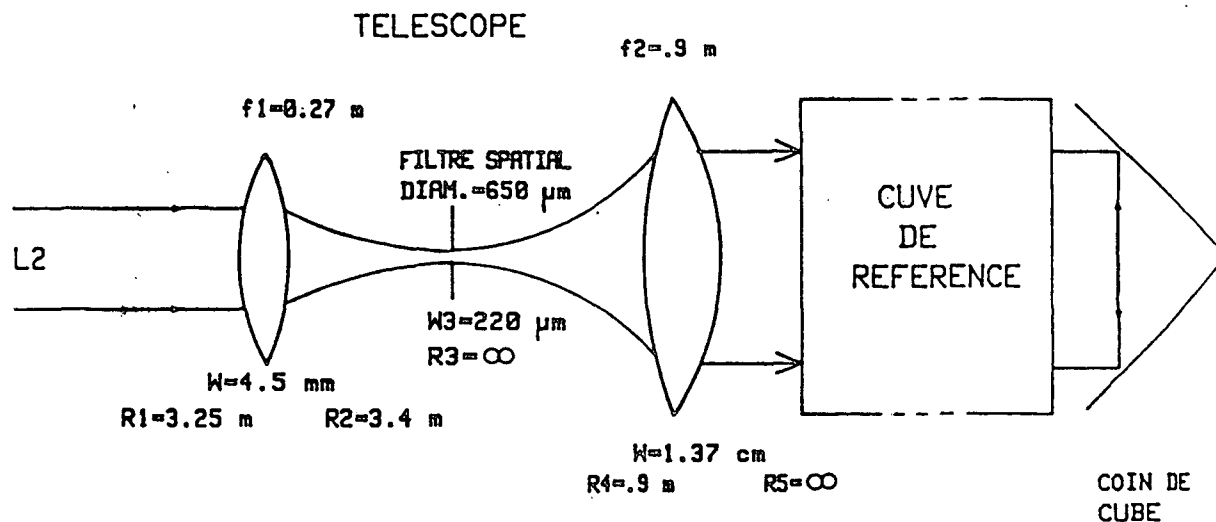


Fig. 2.3.4 - Caractéristiques géométriques du faisceau laser L2 au niveau du télescope à l'entrée de la cuve de référence (longueur 6 m).

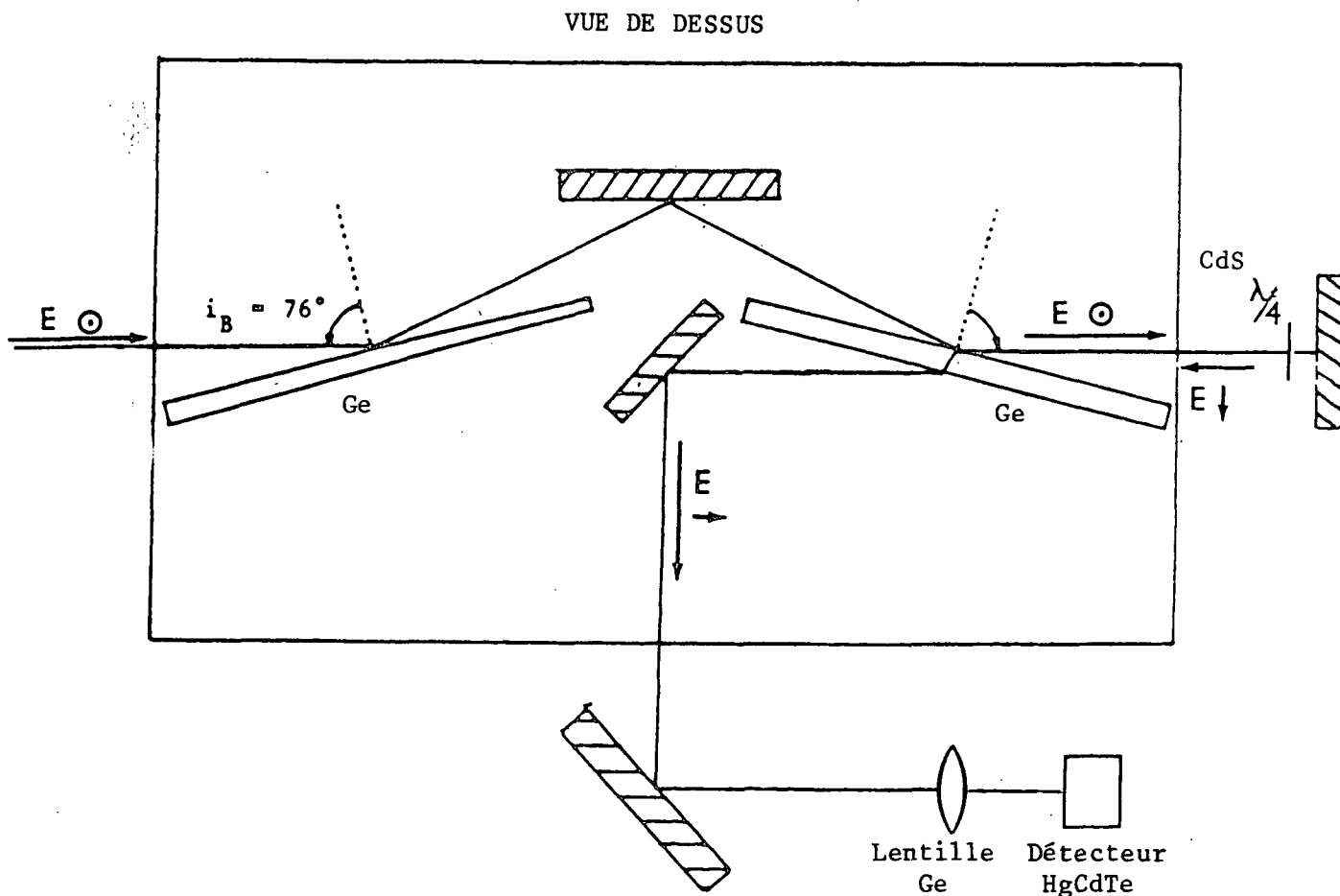
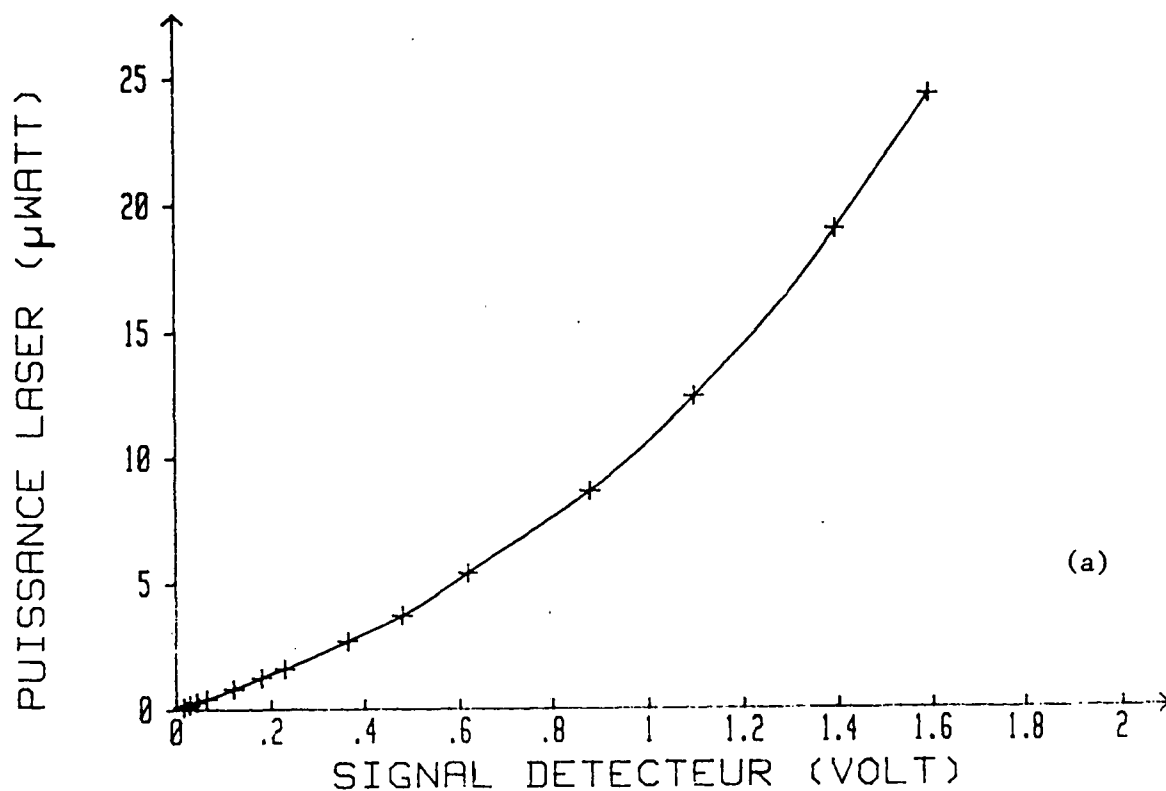


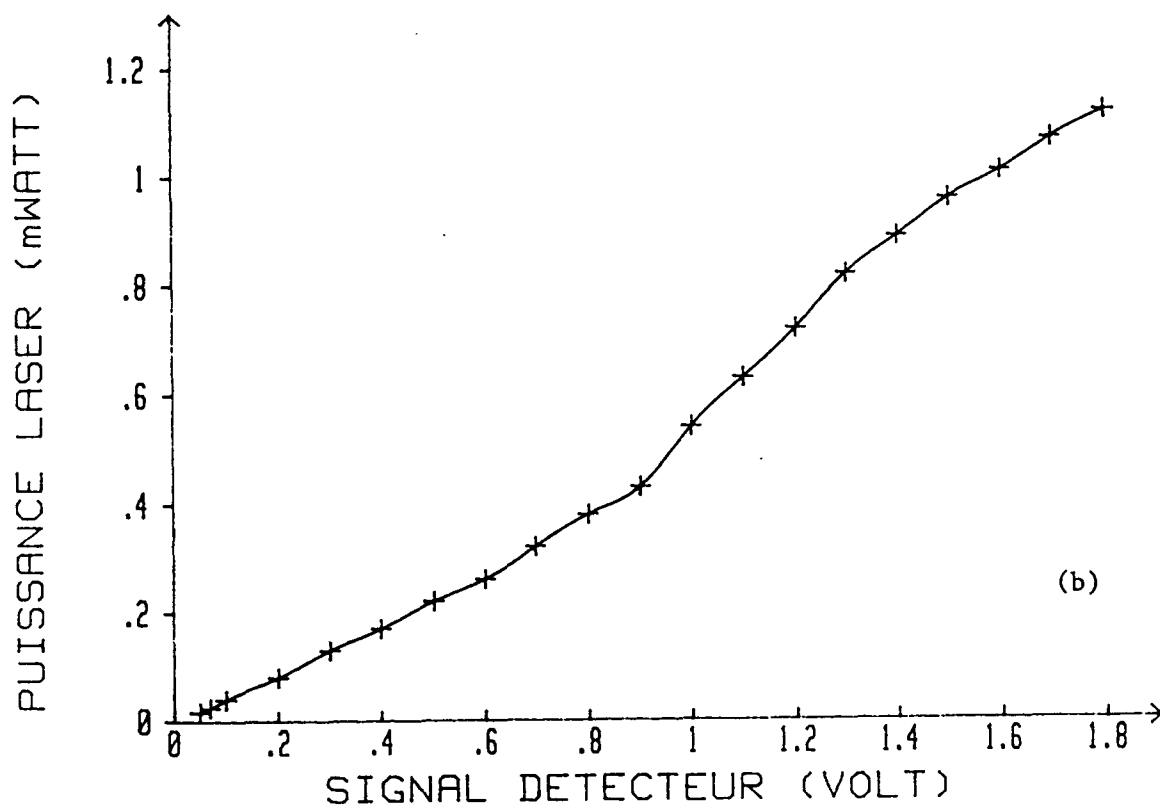
Fig. 2.3.5 - Schéma de fonctionnement d'un polariseur en réflexion.

Les deux lames de germanium sont orientées à l'incidence de Brewster. Le faisceau réfléchi sur chaque lame est polarisé verticalement et atténué de 22 % à chaque réflexion. Cette polarisation verticale, après un double passage dans une lame quart d'onde orientée convenablement, et un nombre impair de réflexions sur des miroirs, subit une rotation de  $90^\circ$  et devient horizontale. Le champ rétro-réfléchi est alors totalement transmis à travers la lame de germanium n° 2 puis focalisé sur un détecteur Hg Cd Te.





## DETECTEUR CUVE DE REFERENCE



**Fig. 2.3.6** - Courbes d'étalonnage des détecteurs HgCdTe associés à leurs pré-amplificateurs respectifs. Le détecteur associé au faisceau envoyé dans la grande cuve (a) utilise un préamplificateur en tension pour enregistrer de faibles signaux (typiquement quelques  $\mu\text{W}$ ). Par contre le détecteur du faisceau envoyé dans la cuve de référence (b) utilise un préamplificateur en courant qui permet d'utiliser des puissances laser de l'ordre du mW, sans saturation du détecteur.

### 2.3.3 OBTENTION DU SIGNAL DE CORRECTION

L'asservissement en fréquence d'un laser nécessite l'utilisation d'un discriminateur de fréquence, convertissant les fluctuations de fréquence en fluctuations d'amplitude, qui fournira un signal de correction ensuite convenablement traité dans la boucle d'asservissement. Il est clair que ce discriminateur doit présenter une pente la plus élevée possible et posséder un bruit propre le plus faible possible. Ce discriminateur peut être, par exemple, la frange de transmission d'un Fabry-Perot de haute finesse et de longueur très stable, ou bien une transition atomique ou moléculaire étroite. La stabilité intrinsèque d'une transition moléculaire et la possibilité d'obtenir des largeurs de raies de saturation étroites (quelques dizaines de kHz) avec un rapport signal sur bruit élevé, nous ont fait préférer cette dernière solution pour les lasers à  $\text{CO}_2$  et  $\text{N}_2\text{O}$ . C'est donc le signal d'absorption saturée lui-même qui fournira un signal d'erreur permettant de corriger les fluctuations de fréquence du laser. En revanche, le contraste du signal de saturation (typiquement quelques pour cent) est généralement plus faible que le contraste du signal provenant d'un Fabry-Perot. Celui-ci est très largement utilisé pour la prestabilisation de lasers plus bruyants, tels que les lasers ioniques (Krypton, Argon), à colorants et à centres colorés.

### 2.3.4 LE MONTAGE ELECTRONIQUE

Une littérature abondante existe sur les diverses techniques d'asservissement en fréquence d'un laser [4, 2, 75-78]. Pour une étude détaillée de l'électronique d'asservissement et de toutes les applications métrologiques, nous renvoyons le lecteur aux thèses de G. CAMY et A. BRILLET [75, 76] ainsi qu'à la référence [70]. Nous nous bornerons ici à faire une étude soignée du montage spécifique aux lasers à  $\text{CO}_2$  que nous avons développé au laboratoire.

#### 2.3.4.1 Description générale

La boucle d'asservissement de la fréquence d'un laser sur une raie de saturation peut être schématiquement divisée en trois parties principales représentées sur la Fig. 2.3.7.

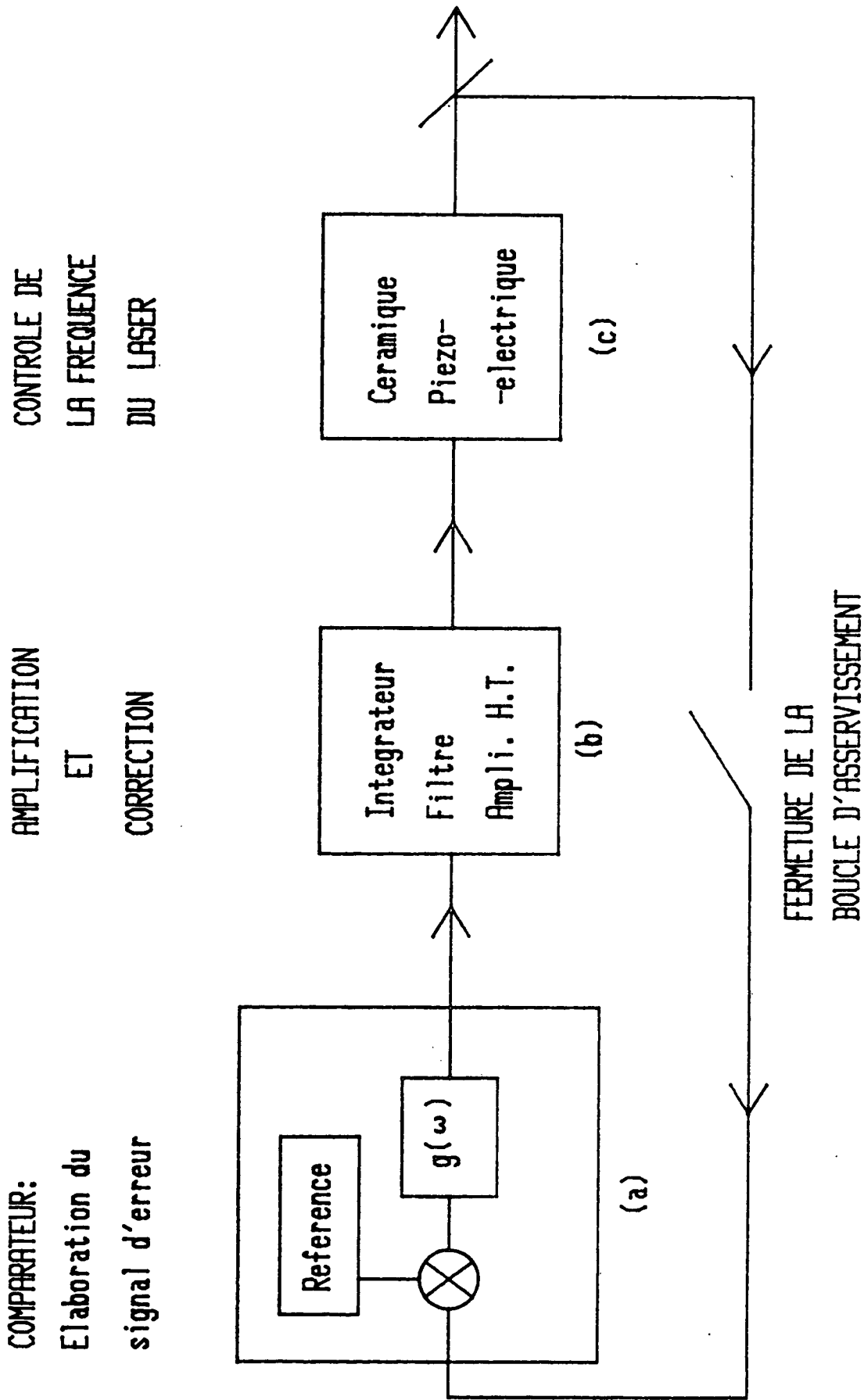


FIGURE 2.3.7 - Principe du fonctionnement d'une boucle d'asservissement en fréquence d'un oscillateur sur une référence (raie de saturation moléculaire, frange de transmission d'un Fabry-Perot,...).

#### 2.3.4.1.1. Elaboration du signal d'erreur

Dans une première étape, la fréquence du laser  $\nu_L$  est comparée à la fréquence moléculaire  $\nu_r$ . La fréquence du laser  $\nu_L$  étant modulée à la fréquence  $f$ , le signal d'erreur n'est autre que le signal d'absorption saturée après démodulation à la fréquence  $f$  ou  $3f$ . En effet les signaux apparaissant à  $f$  et  $3f$  passent par zéro lorsque la fréquence du laser est égale à la fréquence de la transition moléculaire. Ils fournissent donc aisément un signal d'erreur pour la boucle d'asservissement.

La fonction de transfert  $g(\omega)$  de cet "étage" dépend de la réponse en fréquence des éléments suivants :

- La réponse moléculaire:
  - Un détecteur Hg Cd Te présentant une détectivité  $D^* = 4,3 \cdot 10^{10} \text{ cm W}^{-1} \cdot \text{Hz}^{1/2}$ , une bande passante supérieure à 100 MHz et une réponse de 4A/Watt en lumière faible.
  - Un préamplificateur faible bruit de gain 1000 et de bande passante 90 Hz - 200 kHz fonctionnant en amplificateur de tension;
  - ou un préamplificateur spécialement fabriqué au laboratoire, fonctionnant en amplificateur de courant (Figures 2.3.10 (b) et 2.3.11), et permettant de polariser le détecteur en inverse, en vue de détecter des signaux pouvant aller jusqu'à quelques mW ;
  - un amplificateur détection synchrone (Brookdeal 9503 c) (0,2 Hz - 100 kHz) ayant une constante de temps minimum de 10  $\mu\text{s}$ .

#### 2.3.4.1.2 Amplification et correction

Le signal d'erreur est alors intégré et filtré avant d'être amplifié à la haute tension. Nous trouvons ici le servo-amplificateur bien connu, initialement construit par J.L. HALL [ 79 ]. Il comprend un intégrateur à 6 dB/octave, un filtre à 3 dB/octave et un amplificateur haute tension permettant de piloter les céramiques piézo-électriques de l'étage (c). La pente résultante de 9 dB/octave (système asservi d'ordre 3/2) assure la stabilité inconditionnelle du système.

Le détail des fonctions de transfert est représenté dans le plan de Bode, sur la figure 2.3.8 .

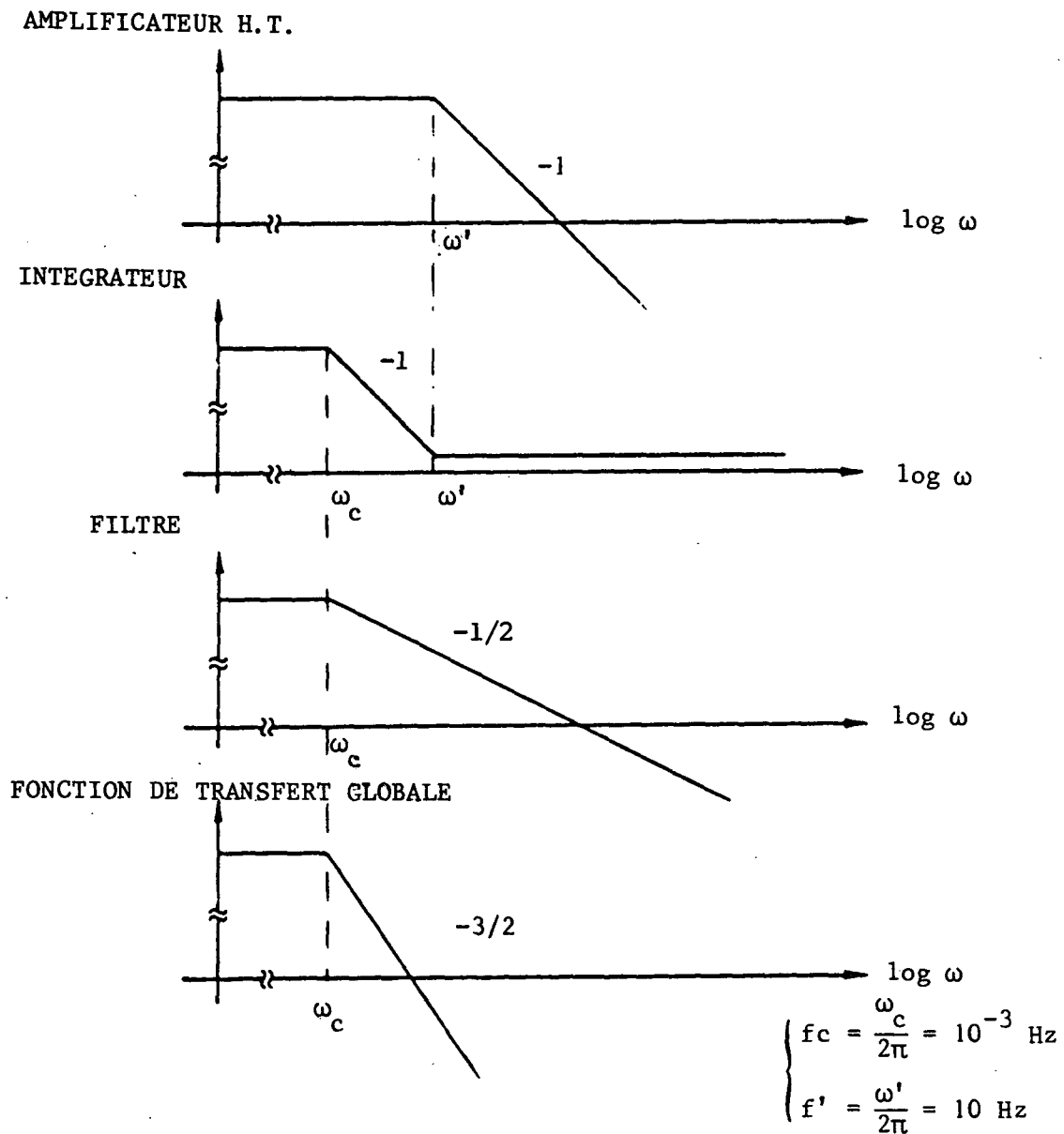


FIGURE 2.3.8

Fonction de transfert des divers éléments de la boucle d'asservissement représentés dans le plan de Bode. La fonction de transfert de l'ensemble de la boucle présente une pente asymptotique  $-3/2$  qui assure la stabilité inconditionnelle du système asservi.

#### 2.3.4.1.3 Contrôle de la fréquence du laser

La fréquence du laser est contrôlée par deux céramiques piézo-électriques agissant sur la longueur de la cavité laser :

- une céramique lente (100 kHz/V) pilotée par l'amplificateur haute tension de (b) (Fig. 2.3.7 et 2.1.2) située sous le réseau, compense les fluctuations lentes de fréquence jusqu'à des fréquences de quelques kHz.

- une céramique rapide (10 kHz/V) supportant le miroir en germanium est pilotée par un amplificateur à pente  $dV/dt$  élevée qui est porté au potentiel de 4 kVolt produisant la décharge. Un coupleur optique assure l'isolation électrique nécessaire entre les basses tensions de commande et la haute tension précédente. Son schéma est donné sur la Figure 2.3.9 . La bande passante de cet ensemble n'est limitée que par la première résonance mécanique du système (miroir + céramique). Cette fréquence de résonance se situe à 21 kHz et nous permet d'atteindre une bande passante à gain unité de plusieurs kHz ( $\sim 7$  kHz).

Le second apport essentiel de cette céramique rapide est la possibilité de moduler la fréquence du laser à une fréquence élevée, de l'ordre de 18 kHz. La détection de l'harmonique trois à 54 kHz, se fait alors totalement en dehors du bruit d'amplitude des lasers  $CO_2$  conventionnels. En effet, le spectre de bruit d'amplitude s'étend sur moins de 20 kHz.

#### 2.3.4.1.4 Discussion

En pratique, c'est le bruit présent dans le signal d'erreur qui impose une limite ultime à l'efficacité de l'asservissement.

Dans ce type de boucle d'asservissement nous pouvons estimer la sensibilité de cette méthode de verrouillage en fréquence [ 80 ] par :

$$\delta f_{[Hz]} = \frac{B}{S} \times \frac{\Delta \nu}{P_n} \quad (2.3)$$

où :- B est le bruit dans la bande passante de la boucle d'asservissement (en Volt),

- S est l'amplitude du signal de saturation (en Volt),
- $\Delta \nu$  est la largeur totale (FWHM) de la raie de saturation (en Hz),
- $P_n$  est la pente normalisée de l'harmonique n détectée, après optimisation de la profondeur de modulation  $P_1 \approx 0,77$  ,  $P_3 \approx 0,34$ .

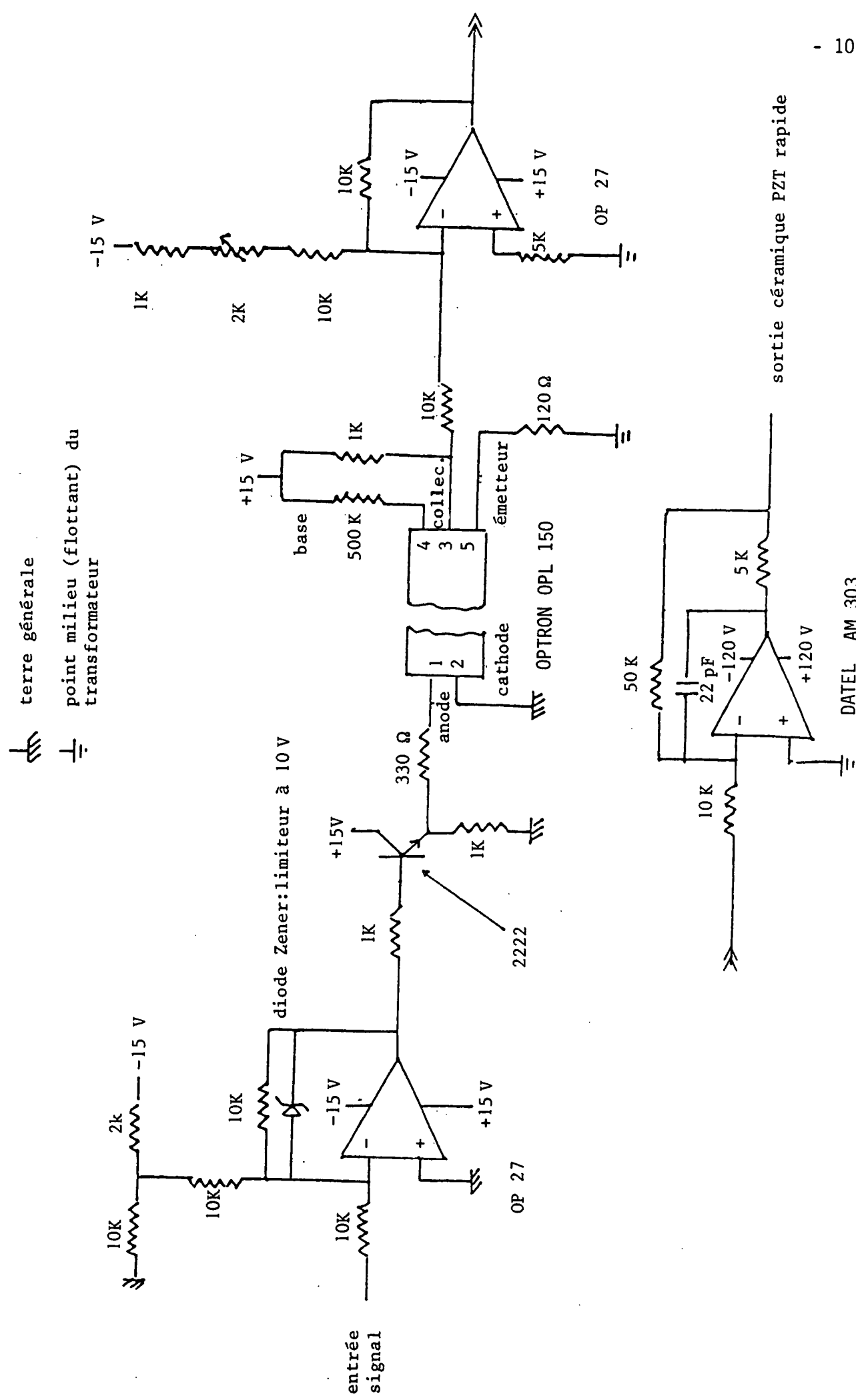


FIGURE 2.3.9 - Schéma électronique du coupleur optique qui permet d'envoyer les signaux de modulation et de corrections rapides de fréquence vers la céramique piézoélectrique rapide qui se trouve à la tête laser.

emple, dans les cuves de référence, de longueur totale 6 m, onces  $P(33)A_1^2$  et  $A_2^3$  de  $^{192}\text{OsO}_4$ , nous obtenons une largeur de l'ordre de 100 kHz (FWHM) avec 2-3 mWatt de puissance d'ion de l'ordre de  $10^{-3}$  Torr. Le rapport signal sur bruit de  $3 \times 10^4$  dans une bande passante de 250 Hz ( $\tau = 1\text{ms}$ ), de l'harmonique 3.

2.3) fournit alors une limite théorique  $\delta f$  de l'ordre de 100 Hz. On peut espérer atteindre dans cette bande passante de

#### différentes sources de bruit

Un effort tout particulier a été entrepris pour identifier et réduire le plus possible les différentes sources de bruit qui viennent se superposer au signal de saturation.

Les causes principales de bruit sont : le bruit quantique ou "shot-noise", le bruit propre du détecteur (bruit du rayonnement thermique ambiant, bruit thermique de résistance...), le bruit électronique du préamplificateur et le bruit d'amplitude du laser.

#### 2.3.4.2.1 Généralités

Un détecteur Hg Cd Te, comme toute photodiode, génère à partir de la puissance laser reçue  $P_L$  un courant  $i$ , qui s'écrit :

$$i = e \eta \frac{P_L}{h\nu} \quad (2.4)$$

- où -  $\eta$  est le rendement quantique du détecteur,  
-  $e$  la charge de l'électron,  
-  $h$  la constante de Planck,  
-  $\nu$  la fréquence du laser.

La quantité  $\rho = \frac{e\eta}{h\nu}$  représente le rendement de la photodiode exprimé en A/W.

Ce courant correspond à la puissance totale  $P_L$  reçue par le détecteur, mais en fait, le signal utile est  $i_s = C.i$  ;  $C$  représentant le contraste du signal de saturation.



On peut modéliser de manière simple l'effet des sources de bruit en considérant qu'à ce courant  $i_s$  s'ajoute un courant de bruit  $i_b$  qui traduit les contributions des différentes sources ramenées à l'entrée du système.

On pose :

$$i_b = \left[ \sum_n \overline{i_n^2} \right]^{1/2} \quad (2.5)$$

où :  $\overline{i_n^2}$  représente la valeur quadratique moyenne de la contribution de la nième source. Dans la suite nous noterons  $\langle i \rangle = \sqrt{\overline{i^2}}$ .

A ce courant  $i_b$ , on peut faire correspondre une puissance optique équivalente de bruit ou N.E.P. (Noise Equivalent Power) qui caractérise le seuil de sensibilité du système de détection dans les conditions de l'expérience. Soit :  $N.E.P. = i_b / \rho$ .

Nous allons maintenant étudier chacune des sources de bruit  $i_n$  intervenant dans notre système.

#### 2.3.4.2.2 Bruit propre du détecteur

Chaque détecteur est caractérisé par son N.E.P. propre qui mesure la puissance équivalente de bruit lorsque le détecteur ne reçoit que le rayonnement thermique ambiant et en supposant que le bruit introduit par le préamplificateur soit négligeable. Le N.E.P. se ramène à la quantité bien connue :

$$N.E.P. = \frac{1}{D^*} \sqrt{\Sigma} \sqrt{\Delta f} \quad (2.6)$$

où  $D^*$  est la détectivité de la photodiode,  $\Sigma$  sa surface et  $\Delta f$  la bande passante du système de mesure.

Cette relation caractérise la sensibilité ultime du détecteur.

En fait, nous nous intéressons au courant correspondant à cette puissance, soit :

$$\langle i_D \rangle = N.E.P. \times \rho = \frac{\rho}{D^*} \sqrt{\Sigma} \sqrt{\Delta f} \quad (2.7)$$

Connaissant la valeur de la détectivité  $D^*$  donnée par le constructeur, nous pouvons donc accéder à ce courant de bruit  $i_D$ . Ce N.E.P. inclut la contribution du bruit du rayonnement thermique ambiant (à  $T \sim 300$  K) et la contribution du bruit thermique (bruit Johnson) de la résistance de charge du détecteur que nous pouvons évaluer :

• Bruit thermique de la résistance de charge du détecteur

A la résistance de charge du détecteur est associé un bruit thermique (bruit Johnson) :

$$\overline{i_{R_d}^2} = \frac{4 k T \Delta f}{R_d}$$

Soit :

$$\langle i_{R_d} \rangle = 2 \left( \sqrt{\frac{kT}{R_d}} \sqrt{\Delta f} \right) \quad (2.8)$$

Connaissant  $R_d \approx 2.10^3 \Omega$  et  $T = 77$  K, nous pouvons évaluer  $\langle i_{R_d} \rangle$

$$\langle i_{R_d} \rangle = 1,5 \cdot 10^{-12} \sqrt{\Delta f} \text{ (A)}$$

• Bruit du fond de rayonnement thermique

On calcule la puissance du rayonnement thermique vue par le détecteur à partir de la formule de Planck donnant la luminance du corps noir, et des caractéristiques géométriques du détecteur (rayon  $250 \mu\text{m}$ ; angle total de vue  $60^\circ$ ).

L'étendue géométrique :

$$G = \int_0^{\pi/6} \Sigma \cos \theta d\Omega = \Sigma 2\pi (1 - \cos 30^\circ),$$

vaut  $0,5 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{sr}$ , et la luminance du corps noir a pour expression :

$$L_B = \frac{2h\nu^3 \Delta\nu}{c^2 \left\{ \exp \frac{h\nu}{kT} - 1 \right\}} \quad (2.9)$$

où la bande passante du détecteur vaut  $3,4 \mu\text{m}$  ( $11,94 - 8,5 \mu\text{m}$ ),  $T = 300 \text{ K}$ ,  
 $h = 6,6 \times 10^{-34} \text{ J.s}$   $c = 3 \times 10^8 \text{ m/s}$ .

La puissance de rayonnement thermique s'écrit alors :

$$P_F = L_B \times G = 2 \mu\text{W}$$

A cette puissance est associé un bruit quantique  $\overline{i_{RT}^2}$  donné par l'expression :

$$\overline{i_{RT}^2} = 2e \rho P_F \Delta f$$

soit :

$$< i_{RT} > = \sqrt{2e P_F \rho} \sqrt{\Delta f} \quad (2.10)$$

Avec  $P_F = 2 \mu\text{W}$  nous obtenons :

$$< i_{RT} > = 1,6 \times 10^{-12} \sqrt{\Delta f} \text{ (A)}$$

Nous pouvons alors comparer ces quantités à la valeur déduite de la détectivité donnée par le constructeur :

$$D^* = 4,3 \times 10^{10} \text{ W}^{-1} \text{cm Hz}^{1/2} \text{ et } \rho = 4 \text{ A/W}$$

soit :

$$< i_D > = 2,3 \times 10^{-12} \sqrt{\Delta f} \text{ (A)}$$

Cette valeur est alors à comparer à la somme quadratique des contributions calculées précédemment, soit :

$$\left( \overline{i_{RT}^2} + \overline{i_{Rd}^2} \right)^{1/2} = 2,2 \times 10^{-12} \sqrt{\Delta f} \text{ (A)}$$

Il est donc légitime de conserver comme contribution provenant du détecteur la valeur donnée par le constructeur, soit :

$$< i_D >$$

#### 2.3.4.2.3 Bruit de photons

Ce bruit est essentiellement lié au caractère quantique du rayonnement. Il provient aussi bien du fond de rayonnement thermique, que du rayonnement laser de puissance  $P_L$  reçu par le détecteur.

Dans ce paragraphe, nous nous restreindrons uniquement à la contribution du faisceau laser, l'autre contribution, fonction de la géométrie du détecteur ayant été prise en compte dans le bruit propre du détecteur.

Le courant de bruit de photons correspondant à un courant  $i$  dans la photodiode est donné par l'expression :

$$\overline{i_{SN}^2} = 2 e i \Delta f \quad (2.11)$$

où  $\Delta f$  représente la bande passante considérée.

Si  $P_L$  est la puissance du faisceau laser tombant sur la photodiode alors :

$$i = \frac{e \eta}{h \nu} P_L = \rho P_L$$

soit :

$$\overline{i_{SN}^2} = 2 e \rho P_L \Delta f \quad (2.12)$$

Dans notre cas  $\rho = 4 \text{ A/W}$  et par conséquent

$$\langle i_{SN} \rangle = 1,1 \cdot 10^{-9} \sqrt{P_L} \sqrt{\Delta f} \quad (\text{A})$$

Il est alors intéressant de calculer la puissance laser qui donnera une contribution de bruit équivalente à celle du bruit propre du détecteur, soit :

$$\langle i_{SN} \rangle = \langle i_D \rangle \quad (2.13)$$

Il vient :

$$P_L = \left( \frac{2,3 \times 10^{-12}}{1,1 \times 10^{-9}} \right)^2 = 4,5 \text{ } \mu\text{W} \quad (2.14)$$

Ceci signifie donc que pour toute puissance laser supérieure à environ  $10 \text{ } \mu\text{W}$  le

bruit de photons deviendra prépondérant sur le bruit propre du détecteur.

#### 2.3.4.2.4 Bruit d'amplitude du laser

Ce bruit, également appelé "bruit technique", gêne considérablement l'observation des signaux de saturation si l'on n'utilise pas des fréquences de modulation suffisamment élevées pour s'en affranchir. Le spectre de ce bruit (très étendu (qqs MHz) dans le cas d'un laser à colorant [77, 81]) ne dépasse pas la vingtaine de kHz dans le cas de nos lasers à CO<sub>2</sub> conventionnels basse pression et probablement la trentaine de kHz dans le cas des lasers guides d'ondes. La fréquence de modulation de 18 kHz avec détection de l'harmonique 3 à 54 kHz permet de s'affranchir de ce bruit d'amplitude.

Les causes de ce bruit sont nombreuses; citons :

- le bruit induit par les fluctuations de l'alimentation électrique haute tension. Celle-ci est régulée en tension à environ  $5 \cdot 10^{-6}$ ;
- la pulvérisation de la cathode;
- les vibrations induites par la circulation d'eau qui excite les modes propres de vibration de la cavité laser au voisinage du kHz;
- les vibrations acoustiques ont été considérablement réduites par la réalisation d'enceintes composites en plomb, tôle perforée et fibre de verre, décrites au paragraphe 2.2.1. En conséquence, une fois les lasers asservis sur une raie de saturation, ils restent verrouillés plusieurs heures sans difficulté.

Pour une puissance laser  $P_L$  donnée, et en se plaçant au voisinage de la porteuse utilisée pour la transposition de fréquence, ce bruit d'amplitude peut être supposé sensiblement blanc et s'écrire :

$$\delta P_L = \alpha P_L \sqrt{\Delta f} \quad (2.15)$$

où  $\alpha$  est un coefficient de proportionnalité qui décroît lorsque la fréquence augmente.

Le courant de bruit associé s'écrit :

$$\langle i_L \rangle = \frac{e\eta}{h\nu} \alpha P_L \sqrt{\Delta f} \quad (2.16)$$

### 2.3.4.2.5 Bruit du préamplificateur

Le détecteur est en règle générale, suivi d'un préamplificateur qui apporte sa propre contribution au bruit de l'ensemble.

Deux types de préamplificateurs ont été testés au laboratoire pour la détection des signaux de saturation. Soit utilisation du détecteur en mode photovoltaïque et amplification de la tension (Fig. 2.3.10(a)) apparaissant aux bornes du détecteur, soit un fonctionnement en amplificateur de courant en utilisant un amplificateur opérationnel fonctionnant en convertisseur courant-tension (Fig. 2.3.10(b)). Ce dernier montage permet également de polariser le détecteur en inverse.

Dans les deux modèles, on ramène toutes les sources de bruit du préamplificateur à l'entrée sous forme d'un générateur de tension de bruit  $e_n$  avec  $e_n = e_{on} \sqrt{\Delta f}$  et d'un générateur de courant de bruit  $i_n = i_{on} \sqrt{\Delta f}$  et on considère par ailleurs que l'amplificateur est parfait (impédance d'entrée infinie, impédance de sortie nulle et gain infini pour l'amplificateur opérationnel).

Dans le premier cas, les générateurs de courant de bruit sont équivalents à un générateur unique (Fig. 2.3.10(a)) :

$$\overline{i_b'^2} = \overline{i_{SN}^2} + \overline{i_L^2} + \overline{i_D'^2} + \overline{i_n^2} \quad (2.17)$$

où  $i_D'$  représente toutes les contributions provenant du détecteur, à l'exception du bruit Johnson dû à la résistance de charge  $R_d$ , et le rapport signal sur bruit s'écrit :

$$\frac{S}{B} = \frac{R_d i_s}{\left[ R_d^2 \overline{i_b'^2} + \overline{e_n^2} + 4 k T R_d \Delta f \right]^{1/2}} \quad (2.18)$$

Le bruit du préamplificateur peut aussi être caractérisé par le facteur de bruit  $F$  ("noise Figure") qui représente le rapport signal sur bruit à l'entrée sur le rapport signal sur bruit en sortie. Dans ce modèle, la température de la résistance de charge  $T_{R_d}$  est remplacée par une température effective  $T_N$  donnée par l'expression suivante :

$$T_N = T_{R_d} + (F-1) T_{300} \quad (2.19)$$

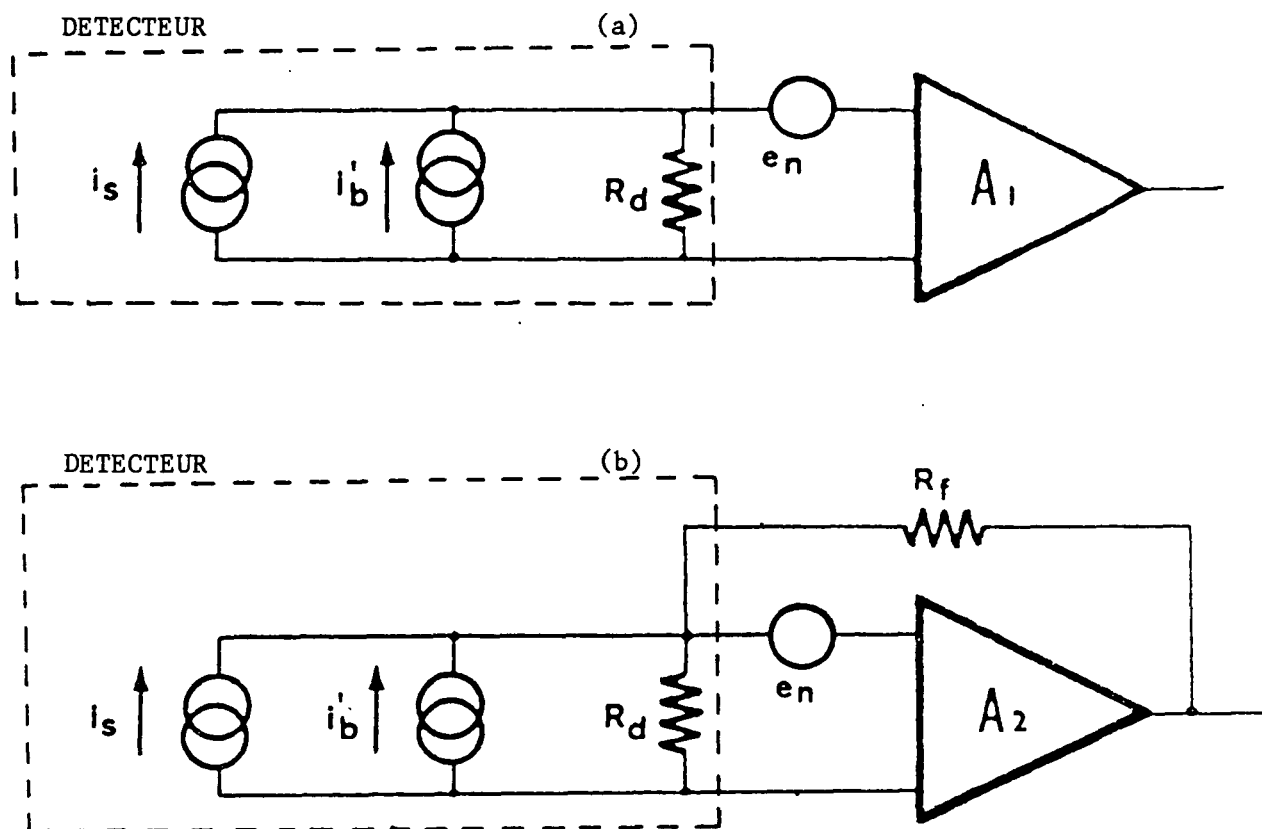


FIGURE 2.3.10 - Schémas équivalents détecteur-préamplificateur.

- (a) On utilise un préamplificateur d'instrumentation faible bruit  $A_1$ . La résistance de charge de la photodiode  $R_d$  est faible devant la résistance d'entrée de l'amplificateur.
- (b) On utilise un amplificateur opérationnel  $A_2$ .  $R_d$  représente ici la résistance parallèle de la photodiode.  $A_2$  est utilisé en convertisseur courant-tension.

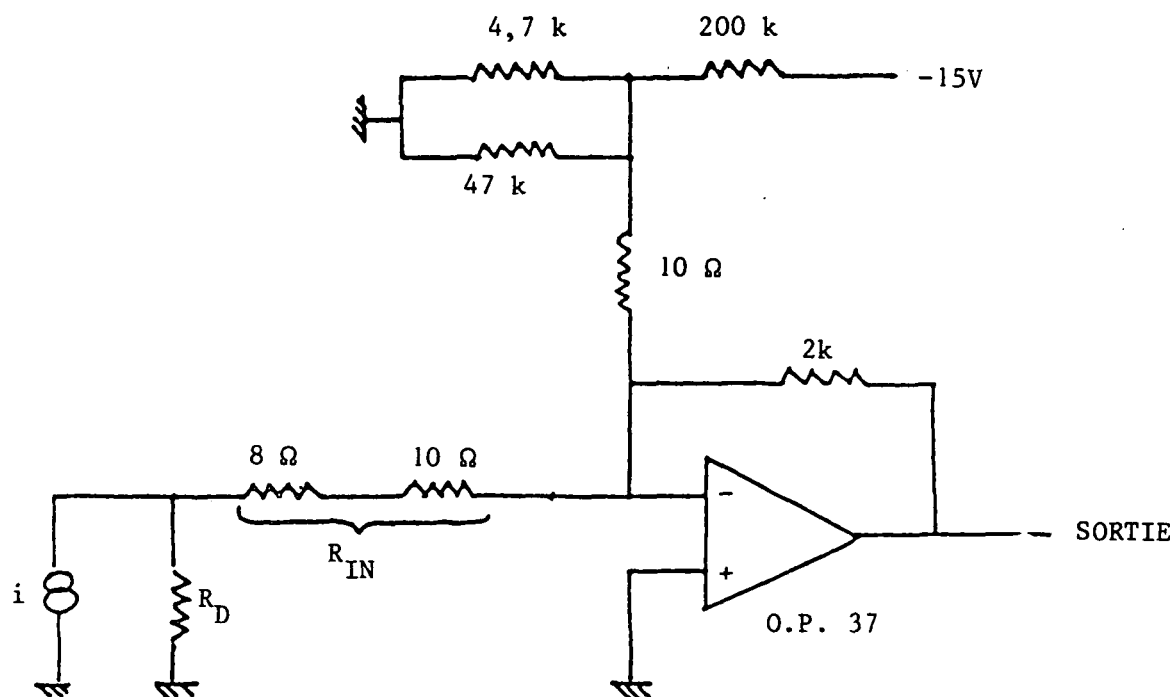


FIGURE 2.3.11 - Schéma électronique du préamplificateur associé au détecteur de la cuve de référence. Ce préamplificateur fonctionne en convertisseur courant-tension (Fig. 2.3.10 (b)) et permet une polarisation en inverse du détecteur.

L'ensemble résistance de charge-préamplificateur introduit alors le bruit suivant :

$$\langle i_{R-A} \rangle = 2 \sqrt{\frac{kT_N}{R_d}} \sqrt{\Delta f} \quad (2.20)$$

Dans notre expérience le préamplificateur présentait un facteur de bruit de 1,17 dB (pour des fréquences de modulation supérieures au kHz). Soit :

$$F = 1,17 \quad \text{et} \quad T_N = 130 \text{ K}$$

et par conséquent :

$$\langle i_{R-A} \rangle = 2 \cdot 10^{-12} \sqrt{\Delta f} \quad (\text{A})$$

Dans le deuxième cas, on associe comme précédemment les générateurs de bruit; on obtient un générateur équivalent (Fig. 2.3.10(b)) :

$$\overline{i_b'^2} = \overline{i_{SN}^2} + \overline{i_L^2} + \overline{i_n^2} + \overline{i_D^2} \quad (2.21)$$

Puis on détermine un générateur de tension de bruit équivalent à toutes les sources de bruit ramenées à l'entrée de l'amplificateur opérationnel supposé parfait. Dans ce modèle, l'impédance de sortie de l'amplificateur étant supposée nulle, le générateur de courant de bruit  $i_b'$  débite dans une résistance  $R = \frac{R_f R_d}{R_f + R_d}$  qui fournit par ailleurs une tension de bruit  $(4 kRT\Delta f)^{1/2}$ . (Dans ce cas, la température est en fait une température équivalente tenant compte du fait que  $R_d$  se trouve à 77 K et  $R_f$  à 300 K.)

On a donc comme générateur équivalent :

$$\overline{e_b^2} = \overline{e_n^2} + (\overline{Ri_b'})^2 + 4 kRT\Delta f \quad (2.22)$$

qui se traduit à la sortie par une tension de bruit :

$$E_b = \langle e_b \rangle \frac{R_d + R_f}{R_d}$$

Le signal vaut :

$$E_s = - R_f i_s$$



D'où le rapport signal sur bruit :

$$\frac{S}{B} = \frac{R i_s}{\langle e_b \rangle} \quad (2.23)$$

Dans ce cas, le bruit total est donné par l'expression suivante :

$$\overline{i_b^2} = \frac{\overline{e_n^2}}{R^2} + \overline{i_b'^2} + \frac{4 kT\Delta f}{R} \quad (2.24)$$

L'expression finale est similaire à celle du premier cas, à condition de considérer comme résistance de charge, la résistance équivalente :

$$R = \frac{R_d R_f}{R_d + R_f} \quad (2.25)$$

Pour donner un ordre de grandeur, un amplificateur opérationnel typique (type OP37) présente les caractéristiques suivantes (pour des fréquences supérieures au kHz) :

$$e_{on} = 3 \text{ nV.Hz}^{-1/2}$$

$$i_{on} = 0,4 \text{ pA.Hz}^{-1/2}$$

soit :

$$\langle i_n \rangle = 4 \times 10^{-13} \sqrt{\Delta f} \text{ (A)}$$

$$\langle \frac{e_n}{R_d} \rangle = 1,5 \times 10^{-12} \sqrt{\Delta f} \text{ (A)}$$

#### 2.3.4.2.6 Bruit de détection synchrone

Les détections synchrones utilisées, de type BROOKDEAL (.2 Hz - 100 kHz), présentent un bruit ramené à l'entrée de l'appareil de  $8 \text{ nV r.m.s. Hz}^{-1/2}$ . Cette détection synchrone est précédée d'un préamplificateur de gain 1000, et par conséquent ce bruit ramené à l'entrée du préamplificateur se trouve à un niveau tout à fait négligeable ( $8 \text{ pV r.m.s. Hz}^{-1/2}$ .)

#### 2.3.4.2.7 Bruit de l'amplificateur haute-tension

Les amplificateurs haute-tension utilisés pour commander les céramiques piézoélectriques sont de deux types : amplificateurs à lampes ou à transistors. Leurs caractéristiques de bruit sont identiques et de l'ordre du millivolt (R.M.S.). Ce bruit présente principalement des composantes de Fourier en-dessous du kiloHertz et donc en-dessous de la fréquence de coupure à gain unité de l'asservissement. Sachant qu'une perturbation introduite en fin de boucle est réduite par le gain situé en amont, il est tout à fait légitime de négliger ces fluctuations de fréquence en boucle fermée. Par contre, en boucle ouverte ces fluctuations sont totalement transmises.

#### 2.3.4.2.8 Discussion

Récapitulons tout d'abord les résultats obtenus précédemment, à savoir:

- Bruit propre du détecteur  $\langle i_D \rangle = 2,3 \times 10^{-12} \sqrt{\Delta f}$  (A)
- Bruit de photons  $\langle i_{SN} \rangle = 1,1 \times 10^{-9} \sqrt{P_L} \sqrt{\Delta f}$  (A)
- Bruit du préamplificateur  $\langle i_A \rangle = 2 \times 10^{-12} \sqrt{\Delta f}$  (A)
- Bruit d'amplitude du laser négligeable pour  $f_{mod} \geq 20$  kHz
- Bruit de la détection synchrone négligeable.

Ces résultats montrent donc qu'à partir d'une certaine puissance  $P_L^0$  le bruit de photon deviendra prépondérant à la fois devant le bruit propre du détecteur et du préamplificateur. Cette puissance  $P_L^0$  est telle que :

$$\langle i_{SN} \rangle = 3 \times 10^{-12} \sqrt{\Delta f} \quad (A)$$

soit :

$$P_L^0 \approx 8 \mu W$$

Par conséquent, dès que  $P_L \geq 20 \mu W$  le bruit de photons deviendra prépondérant devant les autres sources de bruit.

Dans une situation expérimentale typique sur  $OsO_4$  ou  $SF_6$  la puissance laser illuminant le détecteur est de l'ordre de 0,5 à 2 milliwatts et le

bruit dominant est alors uniquement le bruit quantique ("shot-noise").

Partant de l'expression du signal de saturation faisant intervenir le contraste  $C$  de la raie de saturation,

$$i_S = \frac{en}{h\nu} C P_L \quad (2.26)$$

et la contribution du bruit de photons étant prépondérante.

$$i_B = \sqrt{2e \frac{en}{h\nu} P_L} \sqrt{\Delta f} \quad (2.27)$$

nous en déduisons le rapport signal sur bruit  $\frac{S}{B}$

$$\frac{S}{B} = C \sqrt{\frac{n}{2h\nu}} \frac{\sqrt{P_L}}{\sqrt{\Delta f}} \quad (2.28)$$

Il est alors possible d'en déduire la limite de sensibilité de la méthode de détection employée, soit :

$$\delta f(\text{Hz}) = \frac{\Delta\nu}{P_n} \frac{B}{S} = \frac{\Delta\nu}{P_n} \frac{1}{C} \sqrt{\frac{2h\nu}{n}} \frac{\sqrt{\Delta f}}{\sqrt{P_L}} \quad (2.29)$$

Pour des conditions typiques où la puissance laser vaut 1 mW, le rapport signal sur bruit attendu est alors de l'ordre de  $5 \times 10^6 / \sqrt{\Delta f}$  pour un contraste de la raie de saturation de 4%. En fait, à ce niveau de puissance laser illuminant le détecteur, nous avons constaté une chute du rendement de la photodiode. Pour conserver un rendement acceptable, il est nécessaire de polariser le détecteur en inverse (jusqu'à quelques centaines de millivolts). Cependant, il est maintenant bien établi que cette polarisation en inverse pour les détecteurs HgCdTe introduit un bruit supplémentaire en  $1/f$ , dont la bande passante est directement proportionnelle à la tension de polarisation [82]. Ce phénomène (bien plus faible pour les détecteurs InSb, par exemple), est, à notre connaissance, encore mal expliqué en physique des semi-conducteurs. Il impose une limite à la tension en inverse à appliquer.

Le montage électronique que nous avons mis au point est présenté sur la Fig. 2.3.11. Il utilise un amplificateur opérationnel OP 37 dont la

tension de bruit ramenée à l'entrée est de l'ordre de  $3 \text{ nV.Hz}^{-1/2}$ .

Le bruit Johnson produit par les résistances de polarisation est de l'ordre de  $\frac{4kT}{R} \sqrt{\Delta f}$  soit  $1,5 \text{ pA.Hz}^{-1/2}$ . Ces deux derniers bruits sont très petits devant le bruit ramené à l'entrée associé au bruit de photons :  $35 \text{ pA.Hz}^{-1/2}$  (pour 1 mW).

Pour une puissance laser de 0,6 mW le rapport signal sur bruit expérimental dans le cas de la détection de l'harmonique trois (où  $C = 1$  à 2 %). vaut :

$$\left(\frac{S}{B}\right)_{\text{exp}} = 5 \times 10^5 \frac{1}{\sqrt{\Delta f}} \quad (2.30)$$

Nous pouvons alors le comparer à la limite théorique fixée par le bruit de photons, à savoir :

$$\left(\frac{S}{B}\right)_{\text{th}} = C \sqrt{\frac{\eta}{2h\nu}} \frac{\sqrt{P_L}}{\sqrt{\Delta f}}$$

avec :

$$C = 1\%$$

$$P_L = 0,6 \text{ mW}$$

il vient :

$$\left(\frac{S}{B}\right)_{\text{th}} = 8,6 \times 10^5 \frac{1}{\sqrt{\Delta f}} \quad (2.31)$$

Il est donc clair que la détection sur le laser de référence se fait au niveau de la limite du bruit de photons, pour les raies intenses de  $\text{SF}_6$  ou  $\text{OsO}_4$ . Ceci signifie en outre, que la fréquence de détection choisie (54 kHz) est suffisamment élevée pour sortir du bruit d'amplitude des lasers à  $\text{CO}_2$ . La formule 2.29 donne alors une estimation théorique pour la pureté spectrale que l'on peut espérer atteindre dans ces conditions expérimentales :

$$\delta f = \frac{\Delta \nu}{P_n} \times \left(\frac{B}{S}\right)_{\text{exp}} \sqrt{\Delta f} \quad (2.32)$$

soit  $\delta f = 0,6 \sqrt{\Delta f} \text{ (Hz)}$

pour une largeur de raie de 100 kHz.

Pour une bande passante à gain unité de  $\sim 1$  kHz qui est celle de nos asservissements après optimisation de la fonction de transfert de la boucle, on déduit  $\delta f \sim 18$  Hz qui est de l'ordre de grandeur de la pureté spectrale que nous avons obtenue (10 Hz) pour deux lasers stabilisés indépendamment (voir le paragraphe 2.3.5).

Pour conclure ce paragraphe, notons que le facteur lié au contraste de la raie de saturation, est un facteur essentiel qui a conduit certaines équipes à placer le gaz absorbant dans la cavité d'un Fabry-Perot [83,69,84]. A  $10 \mu\text{m}$ , A. CLAIRON au L.P.T.F. a obtenu des contrastes de l'ordre de 30 % avec un Fabry-Perot de 1 mètre de longueur, sur la molécule  $\text{OsO}_4$ . La détection cependant se fait à très faible niveau de signal où la qualité du détecteur ( $D^*$ ), et du préamplificateur jouent un rôle essentiel.

#### 2.3.4.3 Optimisation de la fonction de transfert du système asservi

A partir des fonctions de transfert des différents éléments de la boucle (preamplificateur, détection synchrone, amplificateur haute-tension,...) décrits au paragraphe 2.3.4.1, nous avons construit un ensemble intégrateur et filtre de manière à produire une fonction de transfert globale présentant une pente asymptotique dans le diagramme de Bode de  $-9$  dB/octave. Cette pente assure en effet une stabilité inconditionnelle du système en boucle fermée [75, 79].

Par ailleurs, les caractéristiques de bruit du signal d'erreur d'une part, et du laser libre d'autre part, conduisent à une optimisation de la bande passante de l'asservissement. En effet, celle-ci n'a pas lieu d'être trop élevée, car la densité spectrale de bruit du signal d'erreur ne doit pas venir détériorer la pureté spectrale à court terme du laser libre.

Les densités spectrales de bruit du laser libre,  $S_L(f)$ , et de la référence,  $S_R(f)$ , (frange d'un Fabry-Perot, raie de saturation,...) peuvent être évaluées à partir de l'analyse de Fourier du bruit de fréquence du laser libre et de la référence, ou à partir de la variance d'Allan.

Considérons tout d'abord le laser libre. L'étude du paragraphe 2.2.3 a montré que pour des temps  $\tau$  inférieurs à 0,1 seconde, la variance d'Allan des lasers libres (dont la définition est rappelée en Appendice (C)) était

sensiblement constante et valait :

$$\sigma_L^2(\tau) = \sigma_L^2 \quad (2.33)$$

D'après l'appendice (C) , nous pouvons lui associer une densité spectrale de bruit  $S_L(f)$  qui correspond à un bruit de scintillement de fréquence, soit :

$$S_L(f) = \frac{\sigma_L^2}{2 \text{Log} 2} \frac{1}{f} \quad (2.34)$$

D'autre part, nous pouvons évaluer la densité spectrale de bruit de la référence  $S_R(f)$ .

Dans l'hypothèse d'un bruit blanc, de densité spectrale de puissance  $N = \left(\frac{B}{\sqrt{\Delta f}}\right) (W \times Hz^{-1})$  à l'entrée du détecteur, qui peut représenter le bruit de photons, le bruit Johnson dans la résistance de charge du détecteur, etc..., la densité spectrale des fluctuations relatives de fréquence de la référence [80, 76] vaut.:

$$S_R(f) = \left[ \frac{2\Delta\nu}{\nu} \frac{1}{P_n} \frac{N}{S} \right]^2 \quad (2.35)^*$$

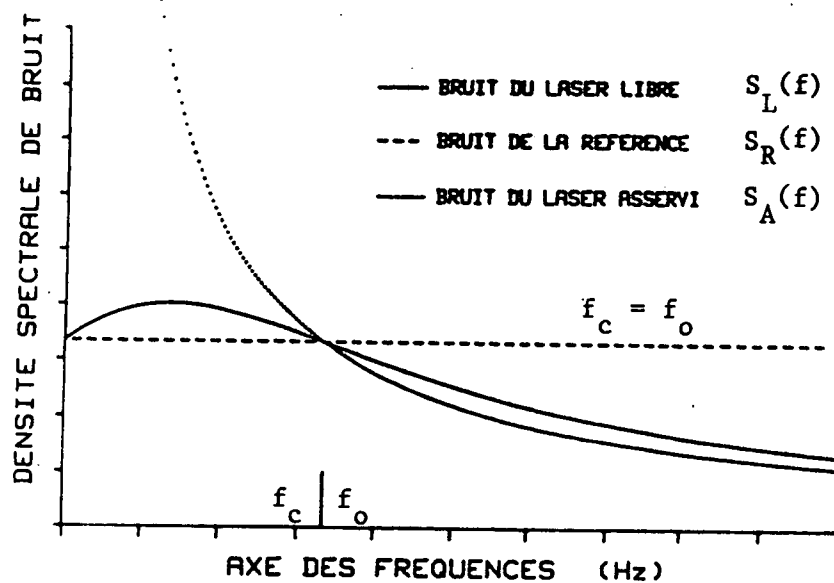
$S_R(f)$  et  $S_L(f)$  sont représentés schématiquement sur la Fig. 2.3.12.

Lorsque le laser est asservi la densité spectrale de bruit est sensiblement celle de  $S_R(f)$  dans la bande passante de l'asservissement et sensiblement celle du laser libre au-dessus de la bande passante.

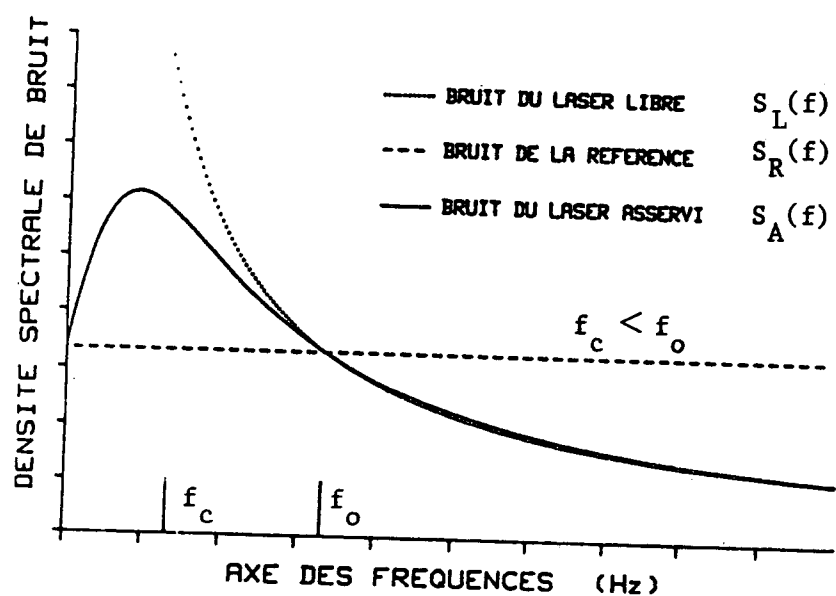
Optimiser la densité spectrale de bruit du laser asservi revient donc à choisir une fréquence de coupure à gain unité ( $f_c$ ) qui minimise la densité spectrale de bruit globale. Dans le modèle considéré, cette fréquence correspond au point de croisement des deux densités spectrales :  $f_c = f_0$  [88].

---

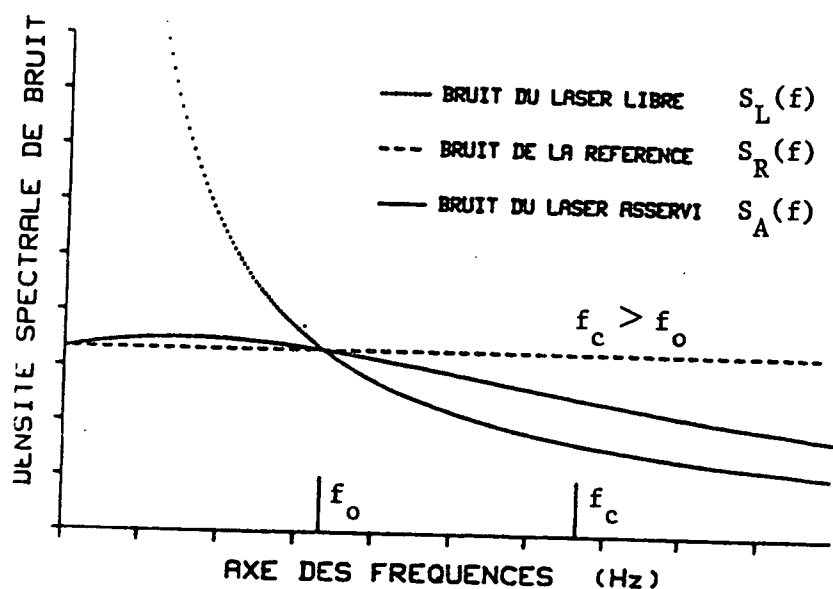
\* La variance d'Allan correspondante est en  $\tau^{-1/2}$ .



(a)



(b)



(c)

FIGURE 2.3.12

- Fig. 2.3.12 - Ces courbes représentent la densité spectrale de bruit du laser libre (bruit en  $1/f$ ) et de la référence (bruit blanc). Le point de croisement de ces deux courbes correspond à la fréquence  $f_0$ . Nous avons aussi représenté la densité spectrale de bruit du laser asservi, calculée à partir d'un modèle classique dans le cas d'une fonction de transfert d'ordre 1 [88]. L'asservissement est alors caractérisé par sa fréquence de coupure de gain unité  $f_c$ . Optimiser cet asservissement consiste alors à choisir  $f_c$  de manière à minimiser la densité spectrale de bruit du laser asservi.
- (a)  $f_c = f_0$  l'asservissement est optimum,
  - (b)  $f_c < f_0$  le système ne corrige pas suffisamment les fluctuations lentes du laser ( $f < f_0$ ),
  - (c)  $f_c > f_0$  le système réinjecte du bruit de la référence aux fréquences ( $f > f_0$ ), d'après la référence [88].



Lorsque  $f_c > f_0$ , l'asservissement réinjecte du bruit aux fréquences  $f > f_0$  d'où une détérioration de la pureté spectrale du laser asservi. Par contre, si  $f_c < f_0$  le système ne corrige pas suffisamment les fluctuations de fréquence  $f < f_0$ . Cette étude est représentée sur la Fig. 2.3.12, où  $S_A(f)$  représente la densité spectrale du laser asservi.

L'optimisation conduit donc à résoudre l'équation

$$S_L(f) = S_R(f)$$

soit :

$$f_0 = \frac{\sigma^2}{2 \log 2} \frac{\nu^2}{4 \Delta \nu^2} P_n^2 \left(\frac{S}{N}\right)^2 \quad (2.36)$$

La variance à court terme du laser libre L2 est de l'ordre de  $5 \cdot 10^{-12}$  et les conditions d'asservissement sur une raie de saturation étant les suivantes :

$$\begin{aligned} \Delta \nu &= 100 \text{ kHz} \\ S/N &= 5 \times 10^5 \\ P_3 &= 0,34 \\ \nu &= 3 \times 10^{13} \text{ Hz} \\ \sigma &= 5 \times 10^{-12} \end{aligned}$$

Nous en déduisons :

$$f_0 = 10 \text{ kHz}$$

Dans le modèle utilisé nous avons supposé que la fonction de transfert de la boucle avait une bande passante très large et ce résultat  $f_0 = 10 \text{ kHz}$  n'est valable que dans le cas où cette bande passante est supérieure à 10 kHz.

En réalité, des facteurs tels que bande passante de détection synchrone, résonance de céramique piézoélectrique, etc..., viennent imposer une fréquence de coupure inférieure à  $f_0$ . Par exemple l'oscillation de la boucle due à la céramique piézoélectrique se situant vers 7 kHz, la fréquence de coupure optimale de l'asservissement se trouve ramenée vers quelques kilohertz.

La boucle d'asservissement que nous venons de décrire était celle qui concernait la stabilisation du laser L2 dans la cuve de référence. De la même façon, le laser L1 illuminant la grande cuve, ou les lasers guides d'ondes LG01, LG02 peuvent être stabilisés en fréquence sur les signaux de saturation

provenant de la grande cuve.

La boucle d'asservissement est identique. Seules les caractéristiques du signal d'erreur diffèrent; dans les conditions optimales de pression ( $\sim 10^{-3}$  Torr), d'intensité, et d'indice de modulation, la largeur n'est que de 30 kHz avec la molécule  $\text{OsO}_4$  pour un rapport signal sur bruit comparable à celui de la cuve de référence (500 000 dans 1 Hz de bande passante).

### 2.3.5 PERFORMANCES DES ASSERVISSEMENTS

Nous présenterons successivement les résultats concernant la stabilité de fréquence des deux lasers conventionnels L1 et L2, puis la stabilité de fréquence des lasers guides d'ondes.

#### 2.3.5.1 Pureté spectrale des lasers asservis

La Fig. 2.3.13(a) présente le spectre de fréquence du battement entre L1 stabilisé sur une raie de saturation de la molécule  $\text{OsO}_4$ , dans la grande cuve et L2 stabilisé sur une raie de  $\text{OsO}_4$  dans la cuve de référence (dérivées troisièmes des raies  $P(39) A_1^2$  et  $A_2^3$  voisines de  $^{192}\text{OsO}_4$ ). Cette figure démontre une pureté spectrale pour ce battement notablement inférieure à la résolution de l'analyseur (30 Hz). La pureté spectrale de chaque laser peut alors être estimée meilleure que la dizaine de Hertz.

L'analyse de cette pureté spectrale avec une meilleure résolution (10 Hz, 1 Hz, ...) nécessiterait un temps de mesure de plusieurs minutes, voire de plusieurs dizaines de minutes. Cette étude n'a pas été possible à cause de lentes fluctuations de la fréquence de battement entre les deux lasers ( $\leq \pm 25$  Hz sur plusieurs dizaines de minutes). Ces fluctuations de fréquence provenaient essentiellement de lentes fluctuations du fond sur lequel apparaît la raie de saturation, produites, par exemple, par une variation de pression dans les cuves ou par la présence de franges d'interférences parasites (lumière rétrodiffusée vers le laser par la lame  $\lambda/4$  ou par le filtre spatial, etc...). Ces franges d'interférences, très sensibles à toute variation de chemin optique, affectent l'amplitude du signal optique détecté. Ceci nous a conduit à utiliser des cuves en acier inoxydable qui peuvent être dégazées à haute température, à monter quatre fenêtres de grandes dimensions ( $\varnothing 50$  mm) en ZnSe, traitées anti-reflets à  $10,6 \mu\text{m}$ , et à faire construire le filtre spatial en zérodur décrit au paragraphe 2.1.2.1.

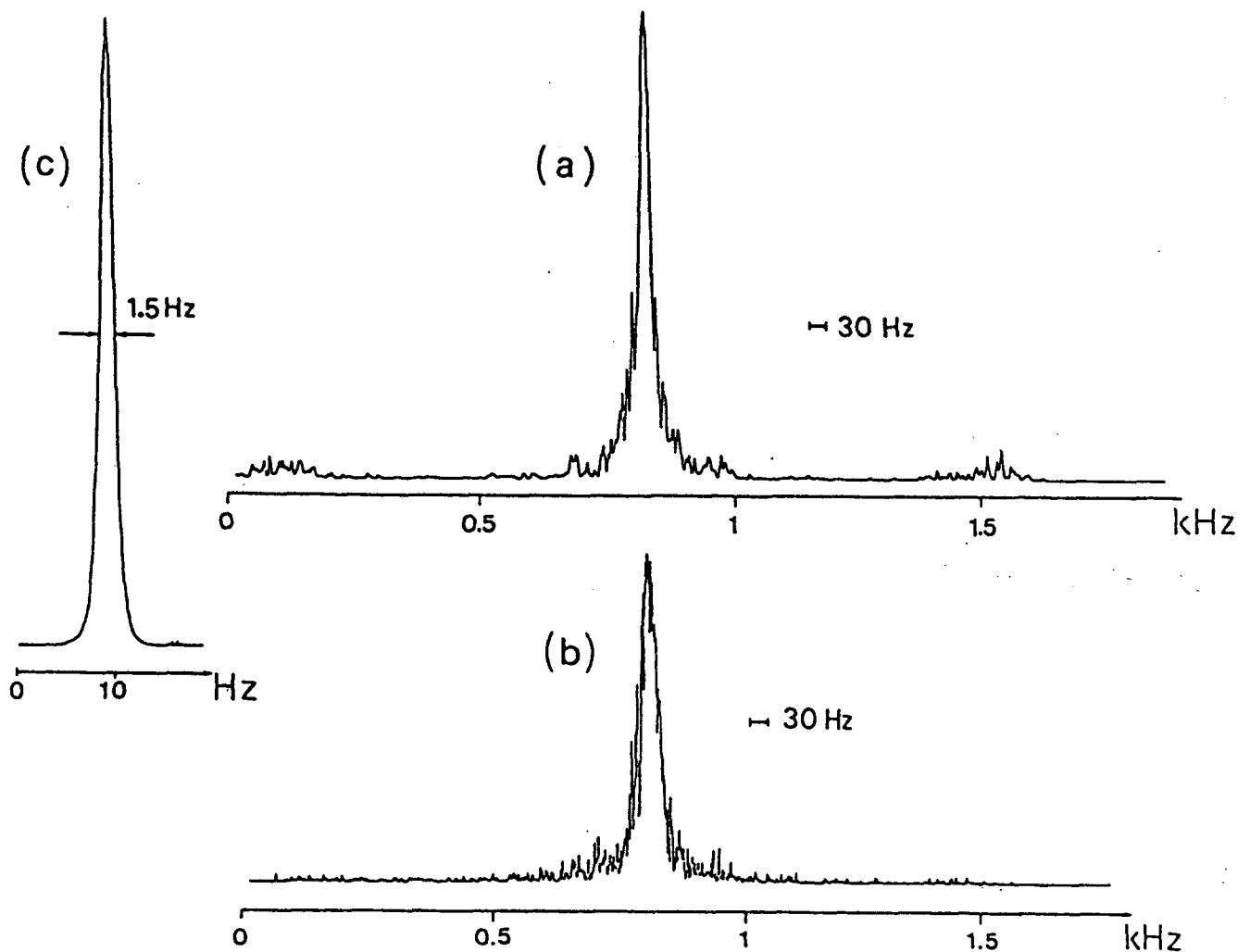


FIGURE 2.3.13

Spectres de battement (échelles verticales linéaires) :

- (a) entre deux lasers à  $\text{CO}_2$  conventionnels asservis indépendamment sur des résonances de saturation de  $\text{OsO}_4$ . L'un des lasers est modulé en fréquence à 15 kHz. Le second à 18 kHz. Les asservissements utilisent l'harmonique trois des signaux de saturation à 45 kHz et 54 kHz. Résolution de l'analyseur de spectre : 30 Hz. Temps de balayage total : 1 minute.
- (b) Mêmes conditions que (a), mais l'un des deux lasers conventionnels a été remplacé par un laser guide d'ondes.
- (c) Le laser guide d'ondes est verrouillé en phase sur un laser conventionnel : résolution de l'analyseur de spectre : 1 Hz, temps de balayage total : 5 minutes. Le décalage électronique par boucle à verrouillage de phase assure le transfert intégral de la pureté spectrale du laser de référence ( $\sim 10$  Hz) au laser guide d'ondes accordable.

Le choix de la molécule  $^{192}\text{OsO}_4$  provient de ses nombreuses qualités métrologiques [36, 37]. C'est une molécule lourde ( $M = 256$ ), sans structure hyperfine ( $I = 0$ ), présentant un effet de recul (14 Hz) et un effet Doppler du second ordre (3 Hz) négligeables. Elle offre de plus, un grand nombre de coïncidences avec les raies du laser à  $\text{CO}_2$ . Ces aspects métrologiques seront détaillés au Chapitre 3 (paragraphe 3.6).

Le même ordre de grandeur pour la pureté spectrale des lasers stabilisés ( $\sim 10$  Hz) a également été obtenu avec la molécule  $\text{SF}_6$  sur les raies de la branche Q présentant une structure hyperfine serrée  $\leq 3\text{-}4$  kHz.

La Figure 2.3.13 (b) présente le spectre du battement entre L2 et le laser guide d'ondes LG01 stabilisé dans les mêmes conditions sur une raie de saturation de  $^{192}\text{OsO}_4$  dans la grande cuve. Cette figure montre qu'il est possible d'obtenir une pureté spectrale de l'ordre de 30 Hz pour un laser guide d'ondes stabilisé.

#### 2.3.5.2 La variance d'Allan des lasers asservis

La stabilité à moyen et à long terme des lasers asservis est commodément décrite par la variance d'Allan de la fréquence du battement entre deux lasers asservis indépendamment en fréquence.

La Figure 2.3.14 (a) présente la variance d'Allan de l'un des lasers à  $\text{CO}_2$  conventionnels lorsqu'il est asservi sur l'harmonique 3 d'une résonance de saturation de la molécule  $\text{OsO}_4$  ( $3f = 4$  kHz). Cette variance est déduite de la variance du battement entre les deux lasers conventionnels asservis dans des conditions identiques, en divisant par  $\sqrt{2}$ .

Les mesures de la Figure 2.3.14 (a) sont sensiblement alignées sur une droite de pente  $-1/2$ , qui correspond à un bruit blanc de fréquence (Appendice (C)). L'hypothèse d'un bruit blanc de fréquence pour le spectre de bruit de la référence (Fig. 2.3.12) se trouve ainsi confirmée. La meilleure variance obtenue actuellement atteint  $4 \times 10^{-14}$  pour  $T = 30$  secondes (soit sensiblement 1 Hz à 30 THz).

Si l'un des lasers conventionnels est remplacé par un laser guide d'ondes, nous obtenons la variance de la Figure 2.3.14 (b), lorsque ce dernier est asservi sur l'harmonique 3 d'une résonance de saturation de  $\text{SF}_6$  ( $3f = 3$  kHz). L'allure de la courbe de variance est similaire à la précédente à une décade

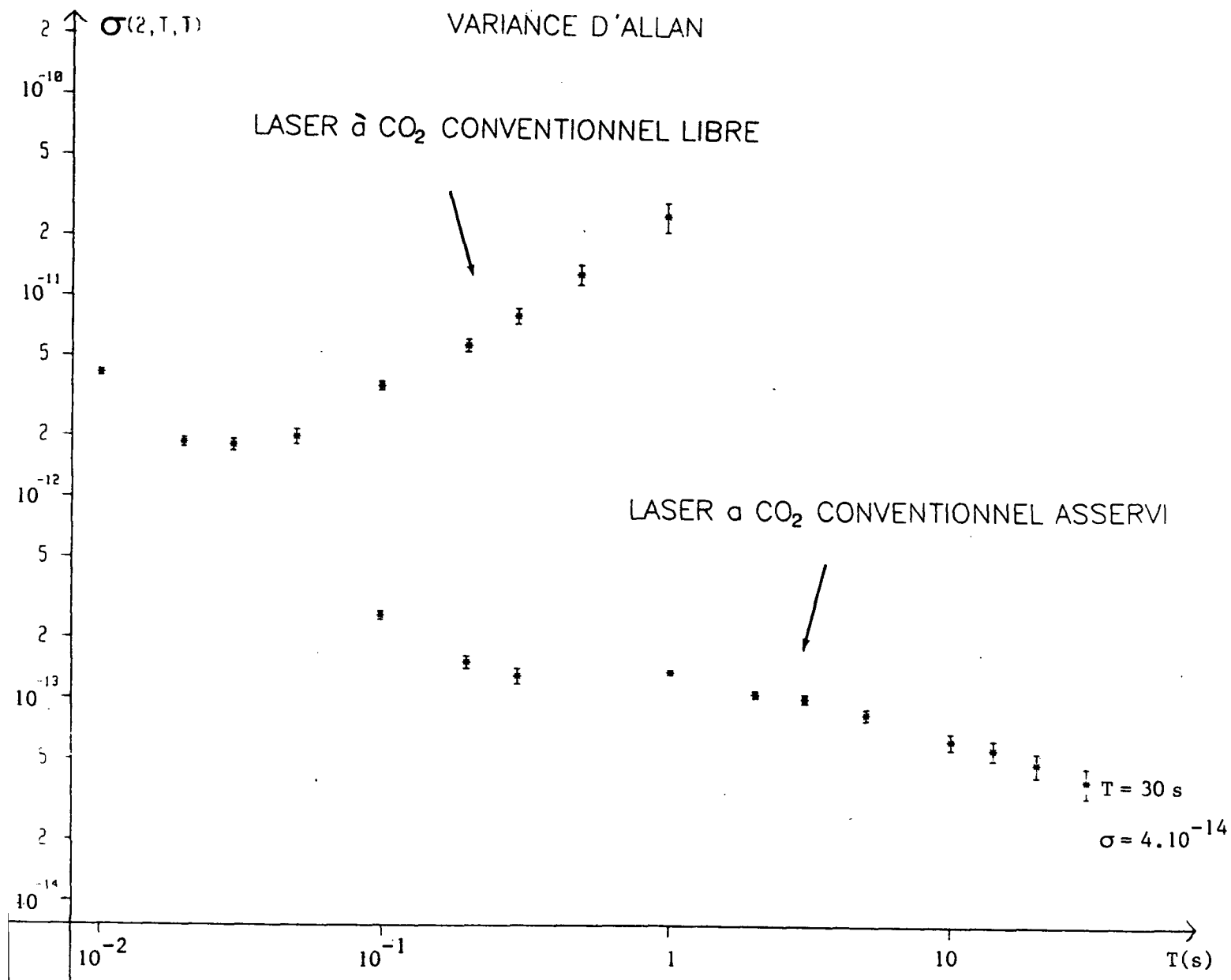


FIGURE 2.3.14 (a)

Variances d'ALLAN de lasers à CO<sub>2</sub> et à N<sub>2</sub>O libres ou stabilisés en fréquence

Lorsque les deux lasers sont supposés identiques, la variance ( $\sigma^2(2, T, T)$ ) de chaque laser est la variance de leur fréquence de battement divisée par 2.

(Noter que  $\sigma^2(2, T, T)$  est présentée en (a) et (c)).

Lorsqu'un laser est beaucoup plus stable que l'autre, (b), la variance présentée est la variance de leur fréquence de battement.

(a) Laser à CO<sub>2</sub> conventionnel : L1 ou L2.

La pureté spectrale à court terme du laser libre est de l'ordre de quelques centaines de Hz.

Lorsqu'il est asservi en fréquence sur l'harmonique 3 d'une résonance de saturation de la molécule OsO<sub>4</sub> ( $3f = 4 \text{ kHz}$ ), la variance d'Allan atteint  $4 \times 10^{-14}$  soit  $\sim 1 \text{ Hz}$  pour  $T = 30 \text{ s}$ .

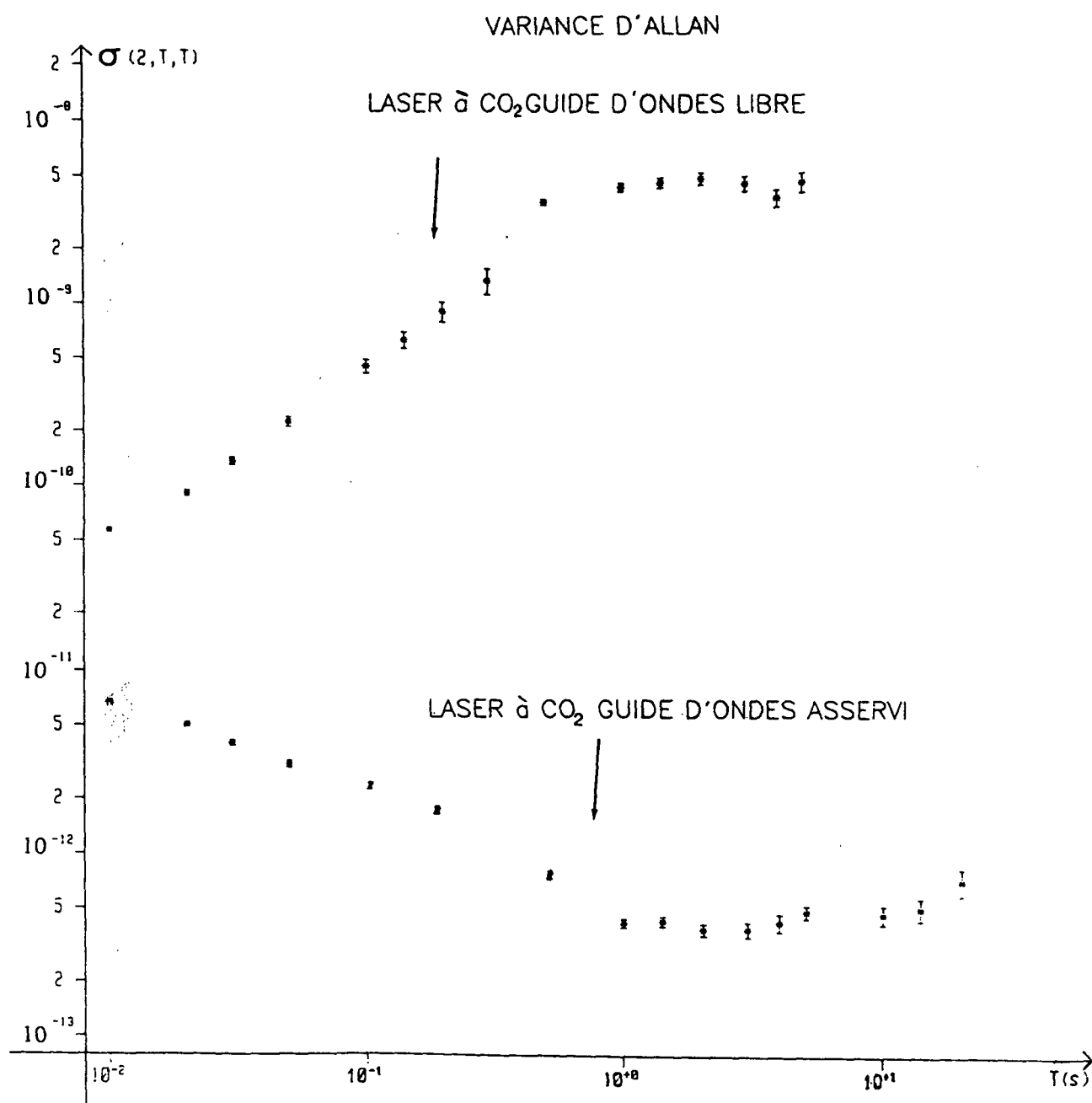


FIGURE 2.3.14 (b)

Laser à CO<sub>2</sub> guide d'ondes : LGO 1.

La pureté spectrale à court terme du laser guide d'ondes libre est de l'ordre de quelques kHz. Lorsqu'il est asservi en fréquence sur l'harmonique 3 d'une résonance de saturation de la molécule SF<sub>6</sub> (3f = 3 kHz), la variance d'Allan atteint  $3 \times 10^{-13}$  pour T compris entre 2 et 10 s, soit une amélioration de plus de quatre ordres de grandeur par rapport au laser libre.

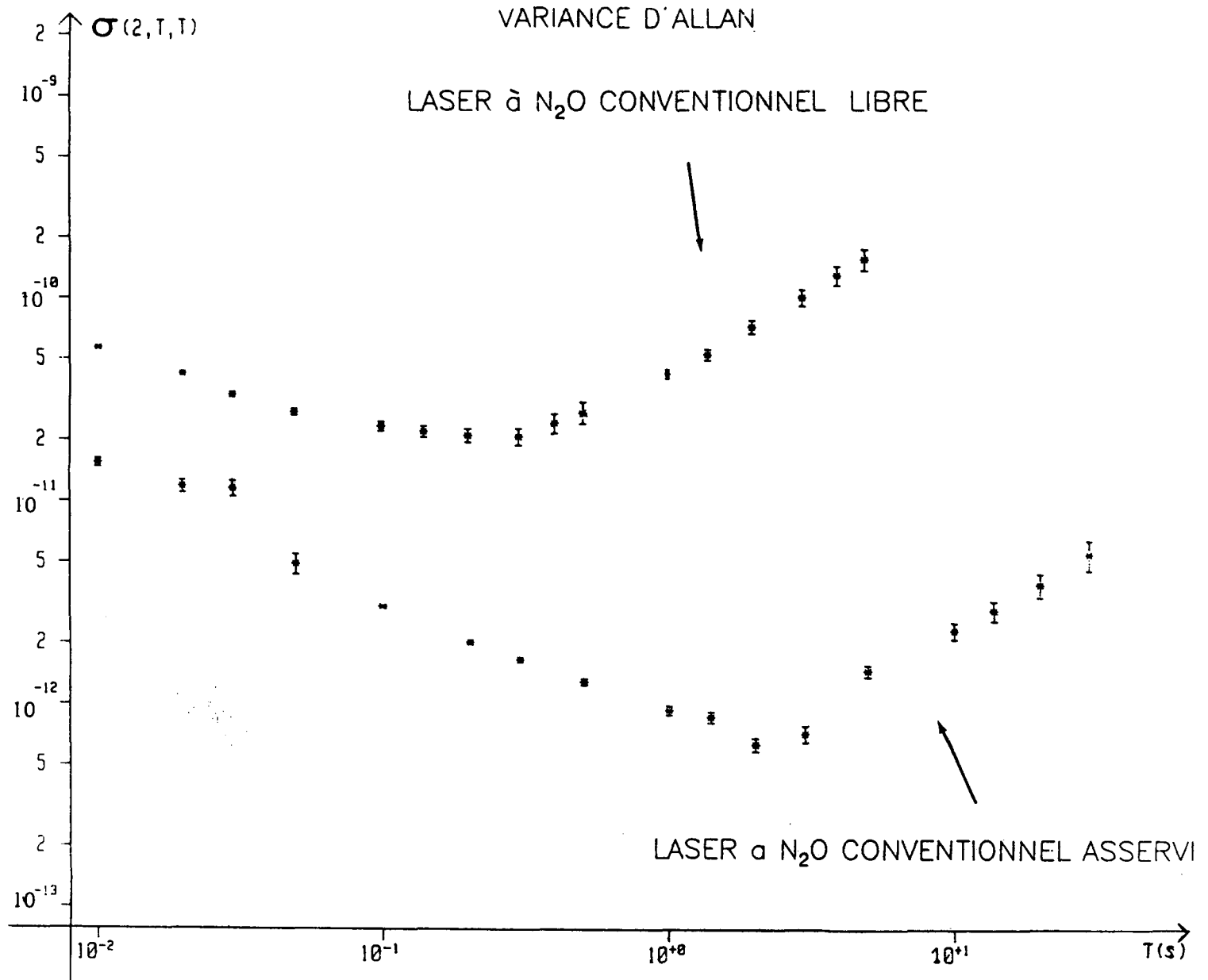


FIGURE 2.3.14 (c)

(c) Laser à N<sub>2</sub>O, conventionnel : L1 ou L2

La pureté spectrale à court terme du laser libre est de l'ordre de quelques kHz.

Lorsqu'il est asservi en fréquence sur l'harmonique 1 d'une résonance de saturation de SF<sub>6</sub>, ( $f = 8$  kHz), la variance d'Allan atteint  $5 \times 10^{-13}$  pour  $T$  de l'ordre de 2 s.

près. Un palier de scintillation de fréquence, à  $3-4 \times 10^{-13}$ , est atteint pour des temps compris entre 1 et 10 s, ce qui représente une amélioration de plus de quatre ordres de grandeur par rapport au laser libre.

La remontée de la courbe de la variance pour  $T > 10$  s s'explique par de lentes variations de pression dans l'une des cuves d'absorption.

Enfin, la Figure 2.3.14 (c) présente la variance d'Allan d'un laser à  $N_2O$  conventionnel libre ou asservi. Cette variance est sensiblement dix fois moins bonne que la variance des lasers à  $CO_2$  conventionnels. Dans cette expérience, l'un des lasers à  $N_2O$  n'était asservi que sur l'harmonique 1 ( $f = 8$  kHz) d'une résonance de saturation de  $SF_6$ , ce qui explique la remontée (pente + 1) de la variance pour les temps supérieurs à 2 s (Dérives lentes de fréquence). Pour un laser à  $N_2O$ , cette variance atteint  $5 \times 10^{-13}$  pour  $T$  de l'ordre de 2 s.

#### 2.3.5.3 Discussion

Cet ensemble de résultats se situe au tout premier plan mondial actuellement pour les lasers à  $CO_2$  [31, 32] et n'est approché que par les techniques très sophistiquées de modulation à haute fréquence, dans le domaine du visible. Au laboratoire, G. CAMY a ainsi obtenu une pureté spectrale de l'ordre de 300 Hz avec un laser à argon [88]. Au J.I.L.A., J.L. HALL et Léo HOLLBERG ont obtenu une pureté spectrale de l'ordre de 100 Hz pour des lasers à colorants dans le visible [77, 89]. Les auteurs de la référence [90] présentent également un spectre de battement calculé par transformée de Fourier à partir de l'enregistrement de la fréquence de battement zéro entre deux lasers He-Ne stabilisés sur la raie  $F_2^{(2)}$  du méthane à  $3,39 \mu m$ . Ce spectre s'étend sur une dizaine de Hz et présente une partie étroite que les auteurs estiment à 0,07 Hz (voir aussi [102]).

Outre l'intérêt fondamental que présente la recherche des limites de la pureté spectrale que l'on peut conférer à un laser, les lasers très stables présentent un grand intérêt pour l'interférométrie à grande distance et pour les lidars à longue portée, qui nécessitent de grandes longueurs de cohérence. La pureté spectrale de 10 Hz des lasers à  $CO_2$  stabilisés leur confère une longueur de cohérence de l'ordre de 30 000 Km.

Ces lidars trouvent une application dans la trajectographie des engins balistiques ou dans la reconnaissance de forme de satellites à l'intérieur de la limite de diffraction. Un système américain de ce type (radar infrarouge cohérent à bande étroite, baptisé Firepond) a déjà permis d'obtenir des pseudo-images de satellites à 6 000 Km de distance.



Le fait de pouvoir stabiliser avec la même précision un laser guide d'ondes présentant une largeur de plage d'émission de l'ordre du GigaHertz (décalages Doppler typiques d'engins spatiaux) devrait avoir d'importantes applications en télécommunications spatiales.

Les applications des lasers très stables en physique fondamentale sont également très nombreuses; il est évident que l'observation de transitions très étroites en absorption saturée ou en franges de Ramsey passe par une excellente pureté spectrale des lasers. De même, la métrologie des fréquences et des longueurs a déjà considérablement bénéficié des possibilités ouvertes par les lasers stabilisés en fréquence. Nous reviendrons sur ce point au Chapitre 3 (paragraphe 3.6).

Enfin, notons que le nouveau système de cuves de référence que nous avons monté fin 1983 devrait nous permettre d'approcher le Hz pour la pureté spectrale d'un laser à  $\text{CO}_2$  asservi en fréquence.

#### 2.4 LA BOUCLE DE DÉCALAGE EN FRÉQUENCE PAR VERROUILLAGE EN PHASE [31]

Nous avons montré au paragraphe précédent qu'il était possible de réaliser une source laser  $\text{CO}_2$  stabilisée en fréquence, présentant non seulement une très bonne stabilité à court terme (pureté spectrale meilleure que 10 Hz), mais aussi une remarquable stabilité à long terme ( $\sigma \leq 10^{-13}$  pour  $1\text{s} \leq \tau \leq$  quelques minutes). L'étape suivante, qui permettra de sonder des structures moléculaires à ultra haute résolution consiste alors à rendre accordable une telle source en lui conservant toutes ces qualités. Pour ce faire, un second laser à  $\text{CO}_2$ , de type conventionnel ou guide d'ondes, est décalé en fréquence par rapport au laser de référence grâce à une boucle de verrouillage en phase.

Le grand avantage d'utiliser un laser guide d'ondes est de rendre accordable cette source, sur plus de 500 MHz autour de chaque raie de vibration-rotation de  $\text{CO}_2$ .

Les fondements de cette technique de stabilisation de fréquence avec un décalage de fréquence ajustable remontent aux travaux de R.L. BARGER et J.L. HALL en 1969 sur le méthane [4].

L'idée fondamentale est d'utiliser la fréquence de battement  $\nu_b$  entre les deux lasers pour la comparer à une fréquence très stable ( $\nu_r$ ) mais ajustable d'un synthétiseur radiofréquence. La comparaison des fréquences s'effectuait à l'aide de convertisseurs fréquence-tension produisant un signal d'erreur proportionnel à  $\nu_b - \nu_r$ . Ce signal d'erreur, après intégration, vient commander la longueur du laser décalé en fréquence de façon à assurer  $\nu_b = \nu_r$ . Malheureusement, un convertisseur fréquence-tension présente le plus souvent des dérives thermiques qui sont un obstacle à l'obtention d'une haute précision.

Par ailleurs, les boucles à verrouillage de phase étaient assez répandues dans le domaine des radiofréquences et micro-ondes. Ce n'est que depuis une quinzaine d'années, avec le développement spectaculaire des synthèses de fréquence pour la réalisation d'horloges optiques que cette technique de verrouillage en phase a été étendue aux lasers. C'est ainsi que Ch. BORDE et J.L. HALL ont pu observer le doublet de recul du méthane à  $3,39 \mu\text{m}$  avec une largeur de raie de 1 kHz [98, 99].

Au laboratoire, nous avons montré qu'il était possible de verrouiller en phase un laser  $\text{CO}_2$  conventionnel sur un autre laser  $\text{CO}_2$  conventionnel (plage d'accord 100 MHz). Puis un laser guide d'ondes a été verrouillé en phase sur un laser conventionnel, sur les 550 MHz de sa plage d'oscillation en fréquence [31]. Cette technique assure une "recopie parfaite" de la stabilité de fréquence du laser de référence, sur le laser décalé.

Voyons un peu plus en détail le principe d'une telle boucle de phase. Le schéma de principe est représenté Fig.2.4.1.

D'une manière générale la tension de sortie d'un générateur de fréquence (V.C.O.)\* s'écrit :

$$V(t) = [V_0 + \epsilon(t)] \sin[2\pi\nu_0 t + \phi(t)] \quad (2.37)$$

où  $\epsilon(t)$  et  $\phi(t)$  représentent respectivement les fluctuations d'amplitude et de phase du signal  $V(t)$ .

Dans la plupart des cas, les fluctuations d'amplitude peuvent être négligées.

$\psi(t) = 2\pi\nu_0 t + \phi(t)$  représente la phase instantanée et la fréquence instantanée s'écrit :

$$\nu(t) = \nu_0 + \frac{1}{2\pi} \frac{d\phi}{dt} \quad (2.38)$$

---

\* V.C.O. : oscillateur commandé en tension.

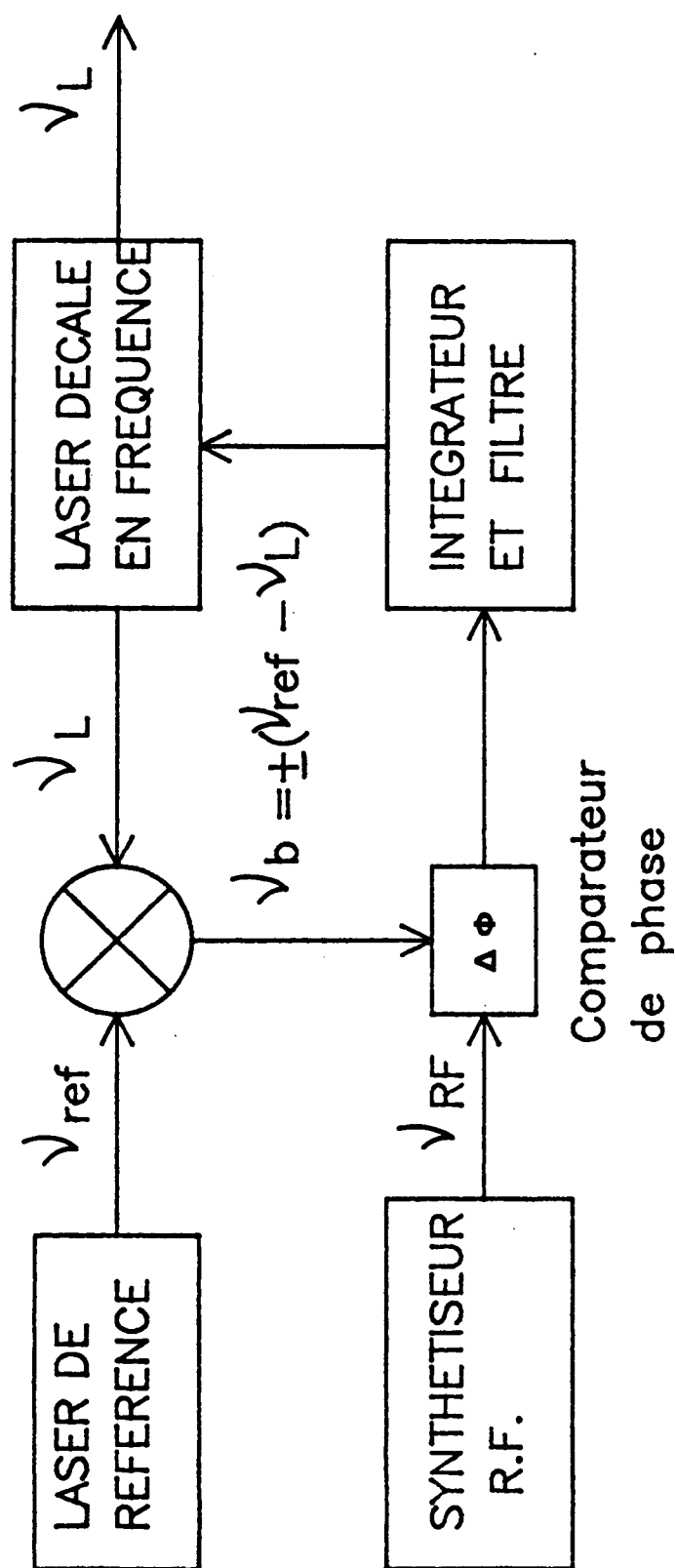


FIGURE 2.4.1

Schéma de principe d'une boucle à verrouillage de phase

Un simple discriminateur de fréquence (raie d'absorption d'une espèce atomique ou moléculaire, convertisseur fréquence-tension, ...) produira un signal de sortie proportionnel à l'écart de fréquence entre la fréquence de référence  $\nu_{\text{réf.}}$  et la fréquence instantanée  $\nu(t)$  :

$$(\nu_{\text{ref}} + \frac{1}{2\pi} \frac{d\phi_{\text{ref}}}{dt}) - (\nu_0 + \frac{1}{2\pi} \frac{d\phi}{dt}) \quad (2.39)$$

Un système asservi pourra alors assurer la condition  $\nu_0 = \nu_{\text{ref}}$  souhaitée avec un signal d'erreur proportionnel à

$$\frac{1}{2\pi} \left( \frac{d\phi}{dt} - \frac{d\phi_{\text{ref}}}{dt} \right) \quad (2.40)$$

Un discriminateur de phase, lui, produira un signal d'erreur proportionnel à la différence des phases instantanées,  $[2\pi\nu_0 t + \phi(t)] - [2\pi\nu_{\text{ref}} t + \phi_{\text{ref}}(t)]$ .

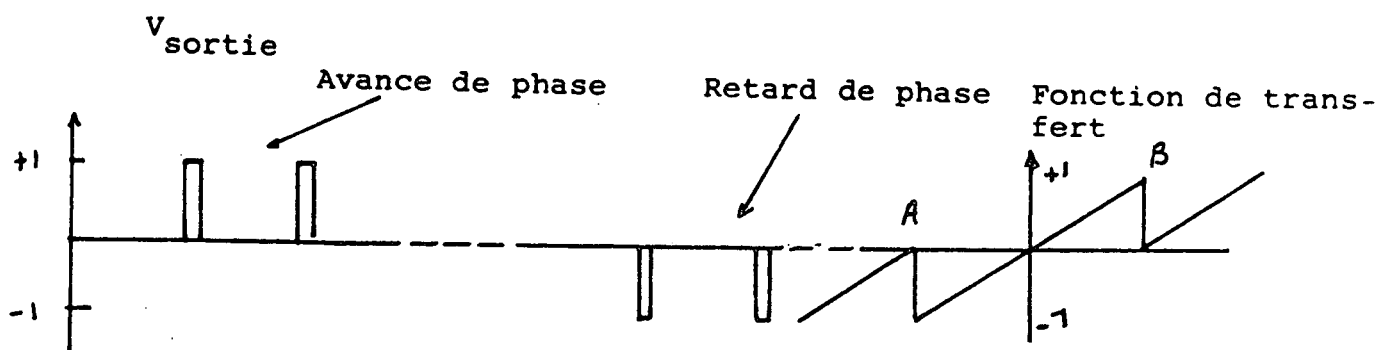
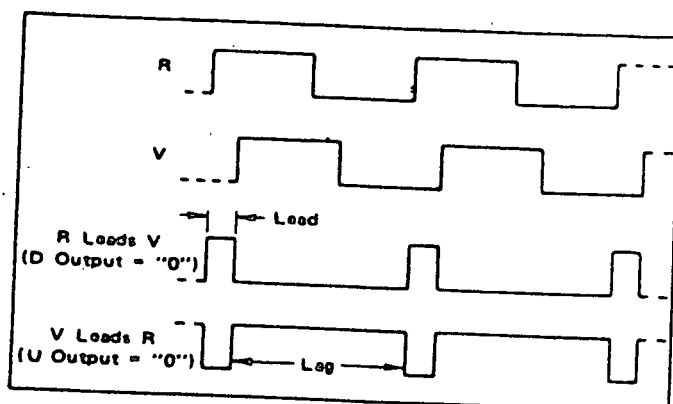
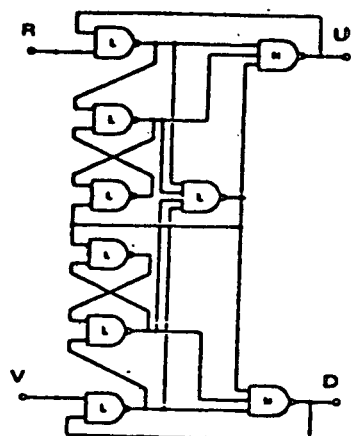
Lorsque la boucle d'asservissement sera fermée, cette différence sera maintenue constante, de sorte que l'on aura simultanément  $\nu_0 = \nu_{\text{ref}}$  et  $\phi - \phi_{\text{ref}} = \text{cte.}$

La comparaison de phase peut se faire avec un mélangeur équilibré ou avec des circuits logiques. On trouvera dans les thèses de B. DAHMANI et de A. FILIMON du L.P.T.F. une étude détaillée de divers comparateurs de phase, portant sur leurs propriétés de bruit de phase et de linéarité vis-à-vis d'une rampe de phase [100, 101].

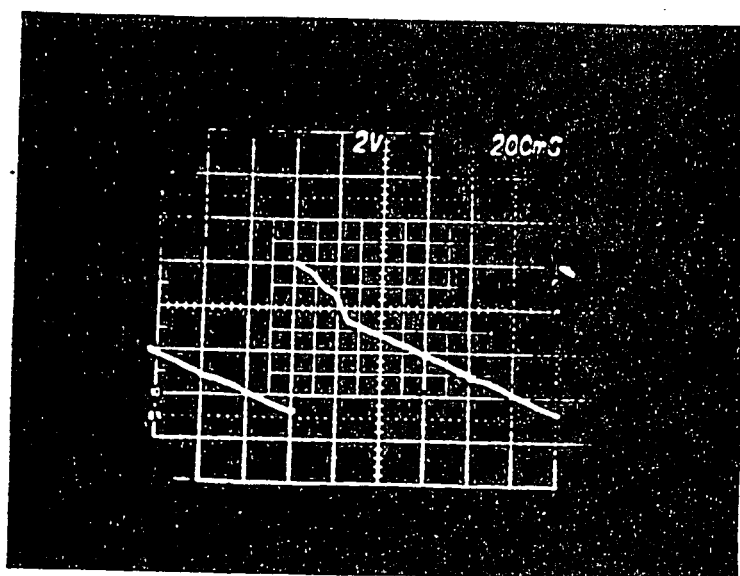
Le circuit que nous avons retenu est un comparateur phase-fréquence MOTOROLA 4044 en logique TTL dont le schéma de principe est donné Fig. 2.4.2. Sa fonction est celle d'un ou exclusif avec changement de signe et sortie différentielle suivant qu'il y a avance ou retard de phase. Sa fonction de transfert présente une pente mesurée de 0,5 Volt /radian [101] et on notera une non-linéarité au voisinage de la fréquence nulle qui provient du temps de propagation du signal. Ceci, qui n'est actuellement pas une limitation dans notre montage, pourrait être évité en utilisant des circuits ECL, dix fois plus rapides, comme il est montré dans la référence [101].

Les discontinuités aux points A et B, lors du basculement du mode fréquence au mode phase devront être évitées en boucle fermée, car elles

# COMPARATEUR DE PHASE-FREQUENCE



TTL :  
MC 4044



pente : 0,5 V/rad.

FIGURE 2.4.2

Fonctionnement du comparateur de phase-fréquence  
et caractéristique du comparateur utilisé (logique TTL). Réf. [101].

induisent une fluctuation de fréquence notable au cours de leur franchissement. Les excursions de phase en boucle fermée seront limitées à la région ]A,B[, par une division suffisante de la fréquence de battement, qui réduira l'excursion de phase correspondante.

Ces idées intuitives peuvent être formalisées plus rigoureusement à l'aide du formalisme des fonctions de transfert [75,184]. Dans le cas général, le schéma de principe d'une boucle à verrouillage de phase est celui de la Fig.

2.4.3. En boucle ouverte, la fonction de transfert s'écrit :

$$G(j\omega) = \frac{1}{n} T(j\omega) = \frac{1}{n} \frac{K_\psi K_V}{j\omega} A(j\omega) \quad (2.41)$$

• Le terme  $\frac{1}{j\omega}$  provient de l'utilisation d'un comparateur de phase qui fournit une tension  $V_\psi(j\omega)$  telle que

$$V_\psi(j\omega) = K_\psi [\psi_r(j\omega) - \psi_o(j\omega)] \quad (2.42)$$

où  $K_\psi$  est le gain du comparateur en V/rad.. La fréquence instantanée étant la dérivée temporelle de la phase, les transformées de Fourier sont liées par la relation :

$$\psi(j\omega) = \frac{1}{j\omega} 2\pi v(j\omega) \quad (2.43)$$

• Le terme  $\frac{1}{n}$  provient de l'introduction d'un diviseur dans la boucle de retour.

•  $K_V$  est la sensibilité (en V/Hz) de la commande de l'oscillateur commandé en tension (V.C.O.).

•  $A(j\omega)$  est la fonction de transfert globale située entre le comparateur de phase et l'oscillateur (filtre, intégrateur, amplificateur...).

La fonction de transfert en boucle fermée s'écrit alors :

$$\frac{v_c}{v_r}(j\omega) = \frac{T(j\omega)}{1 + T(j\omega)/n} = \frac{K_\psi K_V A(j\omega)}{j\omega + \frac{K_\psi K_V}{n} A(j\omega)} \quad (2.44)$$

Cette expression nous montre que pour  $\omega$  tendant vers 0,  $v_c = nv_r$ . L'erreur statique sur la fréquence  $v_c$  est nulle. Le comparateur de phase associé à l'oscillateur commandé en tension (V.C.O.) réalise un intégrateur parfait.

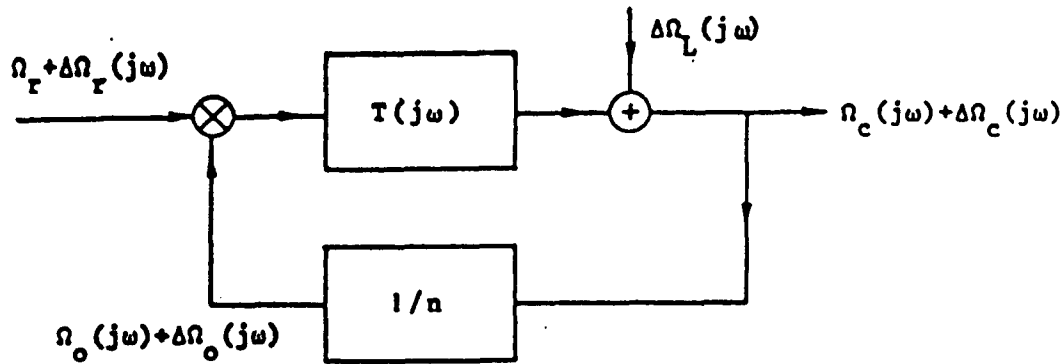


FIGURE 2.4.3

Cette figure représente les fluctuations de fréquence ainsi que les fonctions de transfert dans une boucle à verrouillage de phase [75, 184].

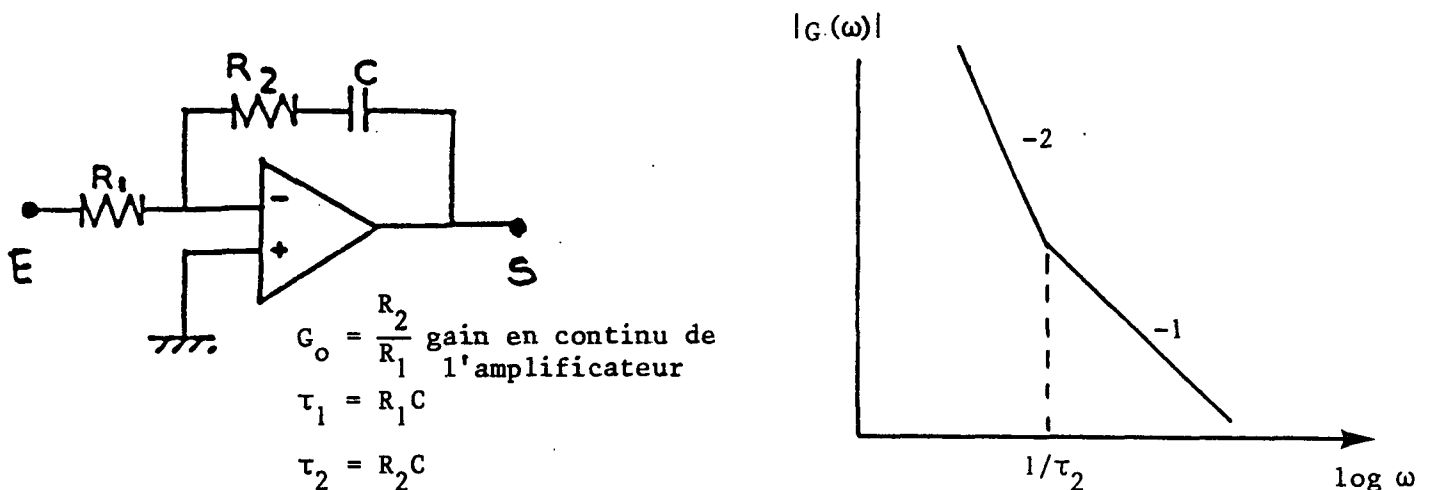


FIGURE 2.4.4

Schéma électronique de l'intégrateur qui, associé au comparateur de phase, assure une fonction de transfert du deuxième ordre pour les basses fréquences ( $\omega < 1/\tau_2$ ). Afin d'assurer la stabilité conditionnelle de l'asservissement, la pente n'est que de -1 au voisinage de la fréquence de coupure à gain unité ( $f_c > 1/\tau_2$ ).

Les fluctuations de fréquence de l'oscillateur sont représentées par le terme  $\Delta v_L(j\omega)$ , ce qui nous conduit à l'expression donnant les perturbations  $\Delta v_C(j\omega)$  du système asservi :

$$\Delta v_C(j\omega) = \Delta v_L(j\omega) + T(j\omega) [\Delta v_r(j\omega) - \Delta v_O(j\omega)] \quad (2.45)$$

soit :

$$\Delta v_C(j\omega) = \Delta v_L(j\omega) \cdot \frac{1}{1 + \frac{1}{j\omega} \frac{K_\psi K_V}{n} A(j\omega)} + \Delta v_r(j\omega) \frac{\frac{K_\psi K_V}{n} A(j\omega)}{j\omega + \frac{K_\psi K_V}{n} A(j\omega)} \quad (2.46)$$

L'examen de cette formule montre que :

- Aux basses fréquences  $\Delta v_C(j\omega) \approx n\Delta v_r(j\omega)$ , les fluctuations de fréquence du système asservi sont celles de la référence.
- Aux fréquences élevées  $\Delta v_C(j\omega) \approx \Delta v_L(j\omega)$  on retrouve les fluctuations de fréquence de l'oscillateur libre.

Dans notre cas, il s'agit d'asservir en phase un laser accordable sur un laser de référence avec un décalage de fréquence obtenu à l'aide d'un synthétiseur radio-fréquence très stable. Le montage utilisé est celui de la figure 2.4.5. A condition de considérer comme grandeur de référence l'horloge à 1/m MHz et comme grandeur de sortie  $v = v_{RF} - v_b$ , on retrouve le modèle classique d'une boucle à verrouillage de phase que nous venons de décrire (Fig. 2.4.3).

Le comparateur de phase fréquence est suivi d'un intégrateur avec avance de phase utilisant un amplificateur opérationnel et assurant une fonction de transfert globale du 2ème ordre (Fig. 2.4.4). La valeur de  $\tau_2$  a été ajustée de manière à obtenir une stabilité conditionnelle en boucle fermée. Le signal d'erreur intégré est alors envoyé à la fois sur la céramique rapide (directement pour compenser les fluctuations hautes fréquences), et sur la céramique lente (après une nouvelle intégration) pour corriger les fluctuations basses fréquences. Le schéma complet est donné Figure 2.4.5.

La fréquence de coupure à gain unité de la boucle de phase est de quelques kHz, le gain statique étant supérieur à 40 dB.

L'optimisation de la fonction de transfert et de la fréquence de coupure à gain unité a été effectuée en suivant la même procédure que celle décrite au paragraphe 2.3.



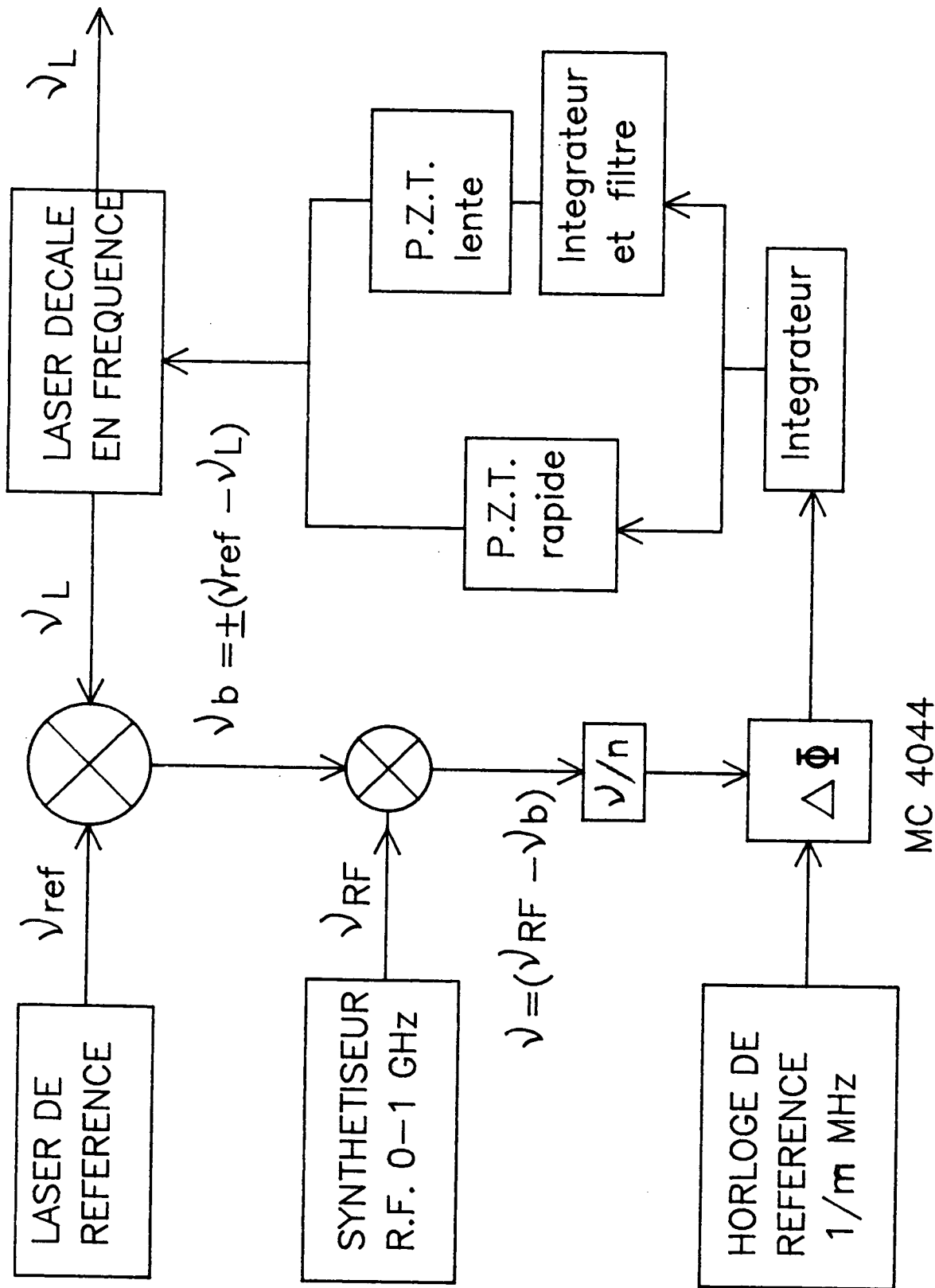


FIGURE 2.4.5

Schéma bloc-diagramme de la boucle à décalage de fréquence par verrouillage en phase du battement entre les deux lasers ( $\nu_b$ ) sur la fréquence balayable d'un synthétiseur radio-fréquence de haute pureté spectrale. Le signal d'erreur est généré dans un comparateur de phase (MC 4044) puis intégré (Fig. 2.4.4). Une double boucle permet alors de corriger les fluctuations rapides de fréquence (P.Z.T. rapide), les dérives continues étant corrigées à l'aide de la céramique lente.

## RESULTATS

Nous présentons sur la Fig. 2.3.13 (c) (p.128) le spectre du battement entre la fréquence du laser de référence et la fréquence d'un laser guide d'ondes verrouillé en phase sur ce même laser de référence. Cette analyse spectrale démontre que la qualité de la recopie à court terme de la boucle de verrouillage en phase est meilleure que le Hz. Nous pouvons donc affirmer que les caractéristiques spectrales du laser de référence sont intégralement transférées au laser guide d'ondes. Le dernier point est alors de s'assurer que le synthétiseur utilisé comme référence de fréquence accordable ne présente pas de dérives de fréquence à long terme. La source radiofréquence utilisée est la combinaison d'un générateur de fréquence HP 8640B (0-500 MHz) verrouillé en phase ( $\frac{\Delta\nu}{\nu} < 5 \times 10^{-8}/h$ ) et d'un synthétiseur balayable en fréquence HP 3325 A (0-60 MHz) ( $\frac{\Delta\nu}{\nu} \leq 5 \times 10^{-8}/h$ ), qui garantissent une stabilité meilleure que quelques Hz sur plusieurs heures. Cette référence ne sera donc en aucun cas une cause d'incertitude dans l'enregistrement des spectres de saturation à ultra haute résolution.

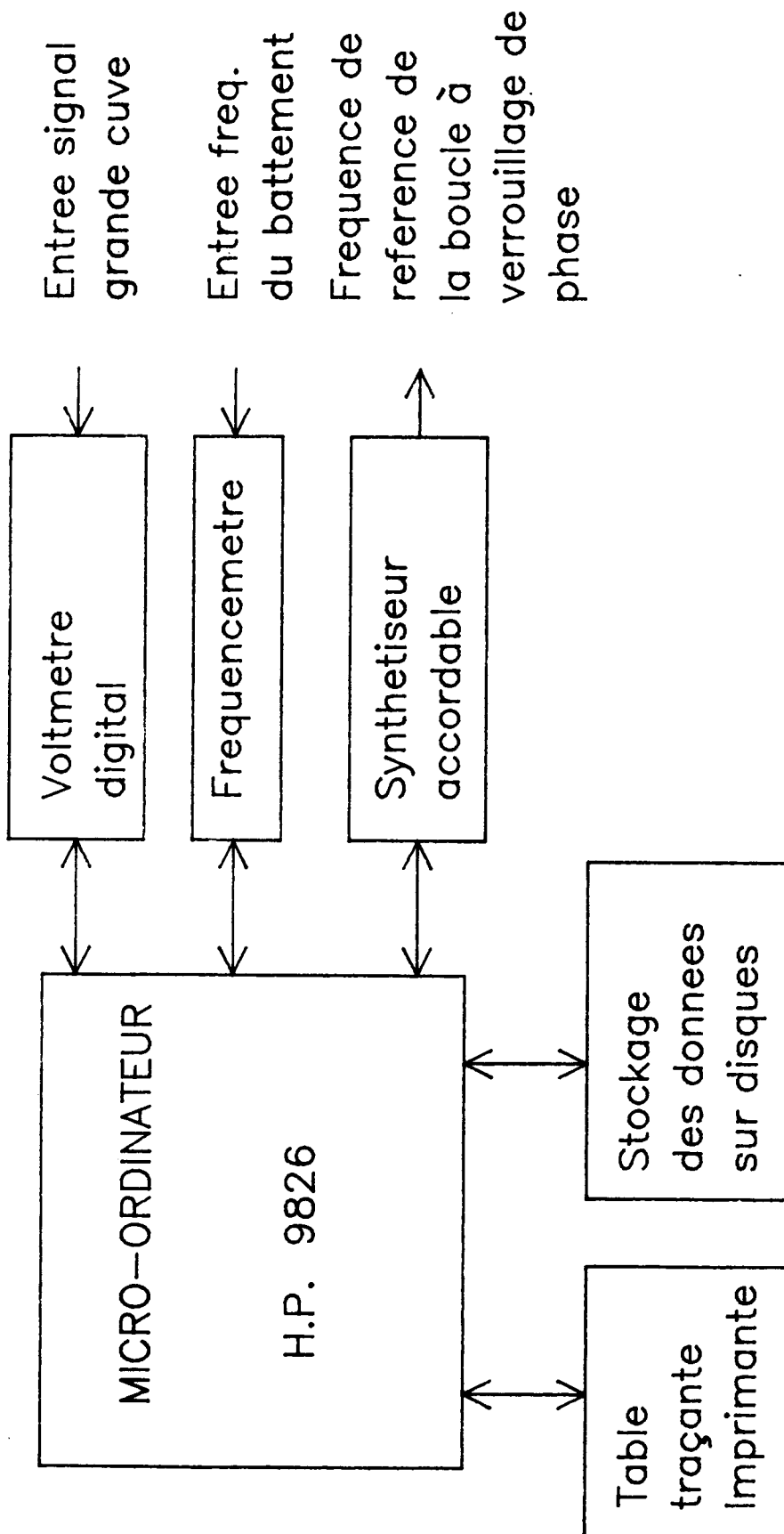


FIGURE 2.5.1

Ce schéma bloc-diagramme représente la commande de l'expérience par le micro-ordinateur. Celui-ci contrôle la fréquence du laser décalé par le synthétiseur et enregistre simultanément les données (voltmètre digital). Les données sont ensuite stockées sur disques pour être traitées ultérieurement.

## 2.5 LE PILOTAGE DE L'EXPÉRIENCE PAR ORDINATEUR

La combinaison de la stabilité intrinsèque des lasers à gaz  $\text{CO}_2$  ou  $\text{N}_2\text{O}$  et la construction de boucles d'asservissement en fréquence très stables nous conduisent à ne plus intervenir sur les lasers, si ce n'est par l'électronique de commande. Dès lors l'expérience devient pilotable depuis la pièce d'électronique, ce qui réduit au minimum le bruit, les courants d'air,..., dans l'environnement de l'expérience. La réalisation d'asservissements stables sur plusieurs heures autorise alors une commande informatique de l'expérience. L'acquisition (progressive) de matériels Hewlett-Packard tels que générateur de fréquence, synthétiseur, fréquencemètre, voltmètre digital, possédant une porte BUS IEEE nous ont conduit tout naturellement à acquérir un micro-ordinateur Hewlett-Packard HP 9826. La compatibilité totale de tous ces matériels a réduit au minimum le temps de réalisation des programmes informatiques et par conséquent de non-utilisation du spectromètre.

La commande du spectromètre se fait à partir du programme "ACCU 3" (écrit en BASIC) dont un schéma bloc-diagramme a été représenté Fig.2.5.1. Le principe consiste à piloter la fréquence du synthétiseur, qui pilote donc la fréquence du laser décalé, et à enregistrer simultanément le signal d'absorption provenant de la grande cuve, grâce au voltmètre digital. Le fréquencemètre, lui, servant à mesurer la position des spectres par rapport au laser de référence. La très grande stabilité des asservissements permet alors d'accumuler les données sur plusieurs balayages sans dérives notables de fréquence qui détérioreraient la résolution des spectres. Pour des transitions très faibles, des enregistrements de durée supérieure à une heure ont été réalisés.

Voyons un peu plus en détails les diverses parties du programme.

- Entrée des paramètres

ETAT DES DONNEES :

FREQUENCE DU GENE. (kHz)	:	220000
PUISSANCE DU SYNT. (dBm)	:	0
FREQ.CENT.DU SYNT. (kHz)	:	12500
PAS EN FREQUENCE (kHz)	:	.1
NOMBRE DE PAS	:	500
NOMBRE D ACCUMULATIONS	:	10
RETARD DU VOLTMETRE (ms)	:	30
ECHELLE DU COMPTEUR (FREQ.A OU C)	:	A
RESOLUTION DU COMPTEUR (Hz)	:	1

Le programme permet donc de choisir la fréquence centrale de la transition ainsi que la plage sur laquelle le balayage est désiré grâce au nombre de pas et à l'intervalle de fréquence entre deux pas . Par commodité le nombre maximum de pas a été limité à 1000. Le temps minimum par point est de l'ordre de 20 à 40 ms, essentiellement limité par l'interface IEEE, et l'écriture en BASIC du programme. Ceci n'est pas une limitation dans notre cas, car d'une part les asservissements sont très stables, et d'autre part, les dérives du laser de référence n'excèdent pas quelques dizaines de Hertz sur des temps d'intégration de plusieurs minutes.

Selon le type de transitions moléculaires nous avons réalisé des balayages qui peuvent s'étendre de quelques kHz jusqu'à plusieurs MHz. La stabilité de la boucle de phase permet de ne compter la fréquence (avec une résolution de 1 Hz) qu'en début et fin de spectre. Ceci permet non seulement de connaître avec précision la fréquence de battement, mais constitue aussi un test pour s'assurer que le système reste correctement asservi. Le voltmètre digital n'est autre qu'un convertisseur analogique digital qui permet de transférer les données sortant de la détection synchrone sur l'ordinateur.

La présence d'un temps de retard sur ce voltmètre digital permet d'ajuster le temps de balayage à la constante de temps de la détection synchrone. Le choix du nombre de balayages permet d'utiliser l'ordinateur comme accumulateur de données. L'accumulation des données se fait automatiquement après la prise de données tout en conservant les données brutes. Il a été possible par exemple, de comparer le premier balayage et le dernier afin de s'assurer de la parfaite superposition des spectres et donc de l'absence de dérives du laser de référence sur le temps d'accumulation choisi.

- Prise de données

MODE DE FONCTIONNEMENT: FAIRE:

BALAYAGES EN RAFALE  
< RAPIDE MAIS INVISIBLE > \*\*\*\*\* 0

BALAYAGES INDIVIDUELS  
< CHOIX APRES BALAYAGE > \*\*\*\*\* 1

PASSAGE MODE IND. --> RAFALE \*\*\*\*\* 2

VISUALISATION PROGRESSIVE  
DE L'ACCUMULATION \*\*\*\*\* 3

```
4400      !
4410      !   BALAYAGE AVEC PRISE DE DONNEES
4420      !
4430      FOR I=1 TO Npas+1
4440          Ff=Fsyn1+Fpas*I
4450          OUTPUT @Fsyn USING 1550;Ff
4460          WAIT .001
4470          TRIGGER 724
4480          ENTER 724;Vr (K,I)
4490      NEXT I
```

Plusieurs options sont offertes, à savoir :

Visualisation et sélection de chacun des balayages au fur et à mesure de la prise de données.

Accumulation en rafale sans visualisation afin de minimiser le temps d'accumulation.

Visualisation de l'accumulation en temps réel.

Dans tous les cas les données brutes sont conservées pour un traitement ultérieur des données.

#### - Traitement des données

Il est toujours possible de visualiser chacun des balayages un à un et d'opérer une sélection sur chacun des balayages.

Une fois cette sélection réalisée, nous sommes alors en mesure d'accumuler les données pour obtenir le spectre final. Un programme de tracé de courbe donne alors la version définitive du spectre (Fig. 2.5.2) en indiquant les paramètres essentiels de la transition. Tout d'abord, fréquence initiale et finale du balayage, ainsi que le nombre de balayages et le temps de chacun des balayages. Une flèche (---- > ou <----) indique le sens croissant des fréquences et permet à l'aide des fréquences initiale et finale de situer la position de la transition par rapport au laser de référence. Enfin, la dernière ligne indique le nom du fichier dans lequel est stocké le spectre, ainsi que la date et l'heure de l'enregistrement.

#### - Stockage des données

Une unité de disquette incorporée au micro-ordinateur permet de stocker instantanément les données ainsi que tous les paramètres propres à la transition étudiée. Le nom de code de chaque fichier permet de reconnaître immédiatement la transition. La Fig. 2.5.2 montre le spectre P33F2502 où

P33 indique la transition de vibration-rotation  $P(33)$ , de  $\text{SF}_6$

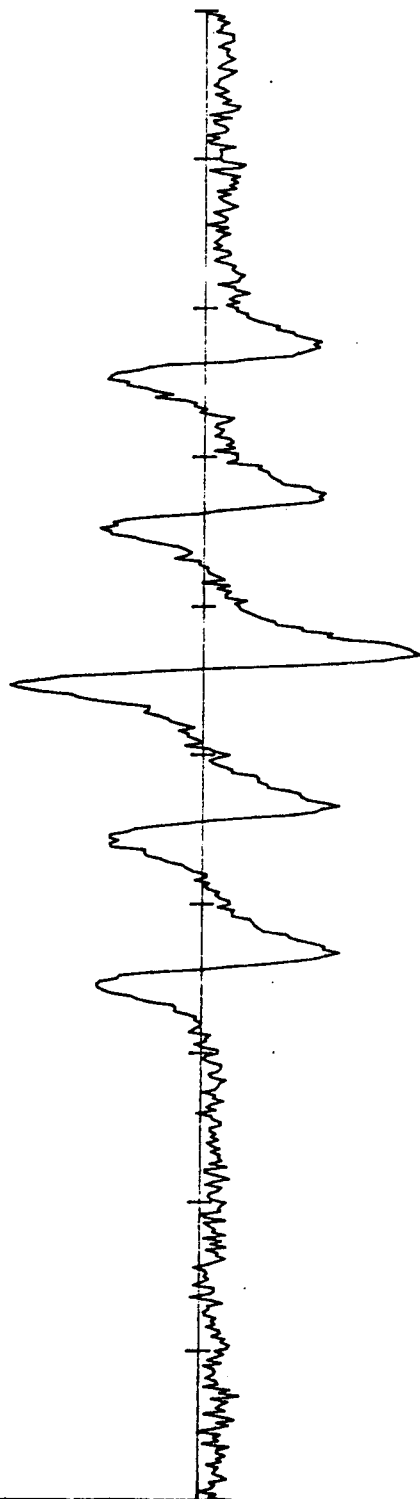
F25 représentation irréductible  $F_2^5$ ,

02 spectre n° 2.

Un listing du programme utilisé est donné dans l'Appendice E .

Nous avons aussi utilisé ce micro-ordinateur relié au fréquencesmètre pour mesurer les variances d'Allan de deux quelconques des lasers asservis indépendamment sur deux raies de saturation.

FR. INIT= 92610.01 kHz FR. FIN= 92710.01 kHz  
MOYENNE APRES 9 BALAYAGES DE DUREE 20 SEC



FREQ. ---->  
BALAYAGE DE PAS .20 kHz SUR 100.00 kHz  
NOM: P33F2502 13:FEV:84 16:27:01

FIGURE 2.5.2

Présentation d'un spectre à ultra-haute résolution, enregistré dans la grande cuve d'absorption, à une pression de  $2 \times 10^{-5}$  Torr et une intensité laser de  $2 \mu\text{W}$ . Il s'agit de la transition  $P(33)F_2$  de la bande  $\nu_3$  de  $\text{SF}_6$ . Le laser est modulé en fréquence ( $f \sim 1 \text{ kHz}$ ) et le spectre d'absorption, après détection synchrone à la fréquence  $f$ , a sensiblement l'allure de la dérivée première d'une lorentzienne. La demi-largeur à mi-hauteur de chaque composante est d'environ  $1,4 \text{ kHz}$ . Le spectre présenté résulte de l'accumulation de 9 balayages individuels, de durée 20 s, enregistrés avec une constante de temps de 30 ms.



## 2.6 LE MONTAGE OPTIQUE DE LA GRANDE CUVE D'ABSORPTION

En dépit des nombreux travaux théoriques sur les franges de Ramsey, dans le domaine optique [17-18,103-106] la voie franges de Ramsey en cuve n'avait été que très peu explorée avant 1980. Seul J.C. BERGQUIST avait effectué une démonstration de principe en réalisant une triple onde stationnaire à partir d'un faisceau unique agrandi et un système de diaphragmes circulaires. Il obtint un intervalle entre franges de 35 kHz à  $3,39 \mu\text{m}$  sur le méthane [19]. Le montage optique que nous avons retenu en 1980 et monté en 1981 utilise la géométrie des trois ondes stationnaires parallèles car nous n'avions pas encore eu l'idée d'utiliser quatre ondes progressives [25-28].

Nous souhaitons concilier deux objectifs complémentaires.

1) - tenter d'observer des franges de Ramsey à ultra-haute résolution (60 Hz de demi-largeur sur  $\text{OsO}_4$ ), la plus haute résolution autorisée par le diamètre de la cuve d'absorption (70 cm);

2) - grâce à la très bonne planéité des fronts d'onde et au triple trajet nécessaires aux franges de Ramsey, des signaux de saturation de largeur inférieure au kHz (HWHM) devaient également pouvoir être observés pour des molécules lourdes telles que  $\text{SF}_6$  ou  $\text{OsO}_4$ . Cette largeur étant principalement limitée par le temps de transit que mettent les molécules à traverser le faisceau laser [40].

Début 1984, seul l'objectif n° 2 a été atteint et nous tenterons d'expliquer en détail les raisons de l'échec de l'objectif n° 1 avec le montage existant actuellement.

Les molécules participant au signal de franges de Ramsey devant croiser les 3 zones de champ, des faisceaux de grand diamètre doivent être utilisés de façon à garder un angle solide raisonnable. La propagation d'un faisceau gaussien sur un trajet de l'ordre de 100 m, impose d'autre part une limite inférieure au diamètre du faisceau ( $2w$ ), si l'on veut garder une courbure faible pour les fronts d'ondes dans chaque zone de champ. Enfin la condition de phase impose un parallélisme des faisceaux de l'ordre de quelques  $10^{-6}$  radian pour la région spectrale de  $10 \mu\text{m}$ , et ceci quelle que soit la direction du faisceau laser incident.

Le montage optique retenu est présenté sur la Fig. 2.6.1. C'est une

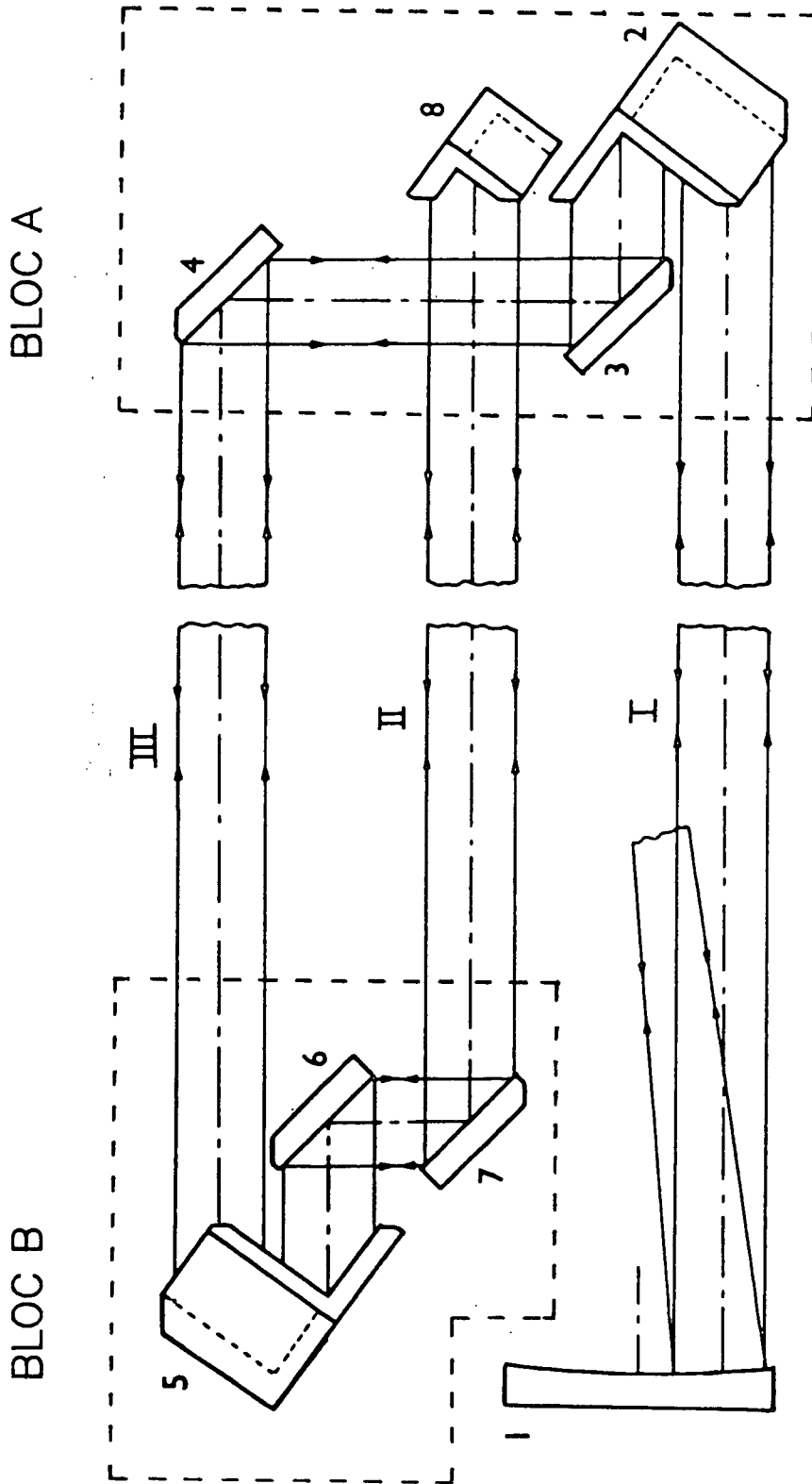


FIGURE 2.6.1

Montage optique pour les franges de Ramsey en cuve

1 : parabole d'entrée. 2,5,8 : coins de cube rétro-rélecteurs creux. 3,4,6,7 : miroirs de renvois à 45°. Tous ces éléments optiques sont situés dans la cuve d'absorption. Les faisceaux I, II, III sont plans et parallèles à une fraction de frange d'interférence à 10  $\mu\text{m}$ , quelles que soient les (petites) fluctuations angulaires du faisceau d'entrée. L'ouverture des éléments optiques est de 11 cm, et l'espacement entre zones extrêmes 2L est de 54 cm. La distance entre les blocs A et B est d'environ 17 m.

extension du montage utilisé par R.L. BARGER sur le calcium à 657 nm [107]. L'onde stationnaire repliée possède un diamètre de 11 cm, un espacement  $2L = 54$  cm entre centres des zones extrêmes, et une courbure de l'ordre de 900 m. L'élément optique, clé de ce montage, est un coin de cube creux doré de grandes dimensions (jusqu'à 18 cm de côté) et de très haute qualité optique [30]. Les faces ont une planéité de  $\lambda/10$  dans le visible et sont perpendiculaires entre elles à  $1''$  d'arc près ( $5 \times 10^{-6}$  radian). Après dorure, les arêtes sont quasiment invisibles et n'introduisent donc pas de diffraction parasite. Ces trièdres rétroreflecteurs sont obtenus par adhérence moléculaire, (ou "contact optique") de trois plaques de zérodur d'épaisseur 30 mm. Les plus grands d'entre eux sont de fabrication SOPTTEL. Tous les autres (au nombre de 4) ont été réalisés dans l'atelier d'optique du Laboratoire par C. PICART.

Ces trièdres assurent un parallélisme rigoureux entre le faisceau réfléchi et le faisceau incident quelles que soient les fluctuations angulaires du faisceau incident. Les miroirs plans (3) (4) (6) (7) sur la Fig. 2.6.1, de dimensions 150 x 110 x 30 mm en borosilicate, ont été polis à  $\lambda/10$  dans le visible, puis dorés.

Les deux structures rétroreflectrices (2,3,4,8) et (5,6,7,1) sont placées à l'intérieur de la cuve d'absorption et séparées par 18 mètres. Les éléments optiques sont montés sur des blocs en aluminium massifs (150 Kg), rigidement fixés à des barres en invar de diamètre 4 cm, qui définissent l'espacement entre les faisceaux ( $L$ ) et qui réduisent les dérives thermiques de phase entre les trois zones d'interaction. Les supports des coins de cube et des miroirs plans ont été conçus de façon à minimiser les contraintes mécaniques qui détériorent la planéité de l'optique. Cette planéité a été contrôlée systématiquement à l'aide de l'interféromètre décrit plus loin. Les miroirs plans à  $45^\circ$  (3) et (7) reposent en particulier sur un très grand nombre de fines lamelles d'épaisseur (1,5 mm), souples, découpées en crêpeaux dans la masse du support d'aluminium, de façon à minimiser l'influence des dilatations thermiques de l'aluminium.

Une modulation de phase de l'un des faisceaux peut être effectuée grâce à trois céramiques piézoélectriques situées sur les trois points

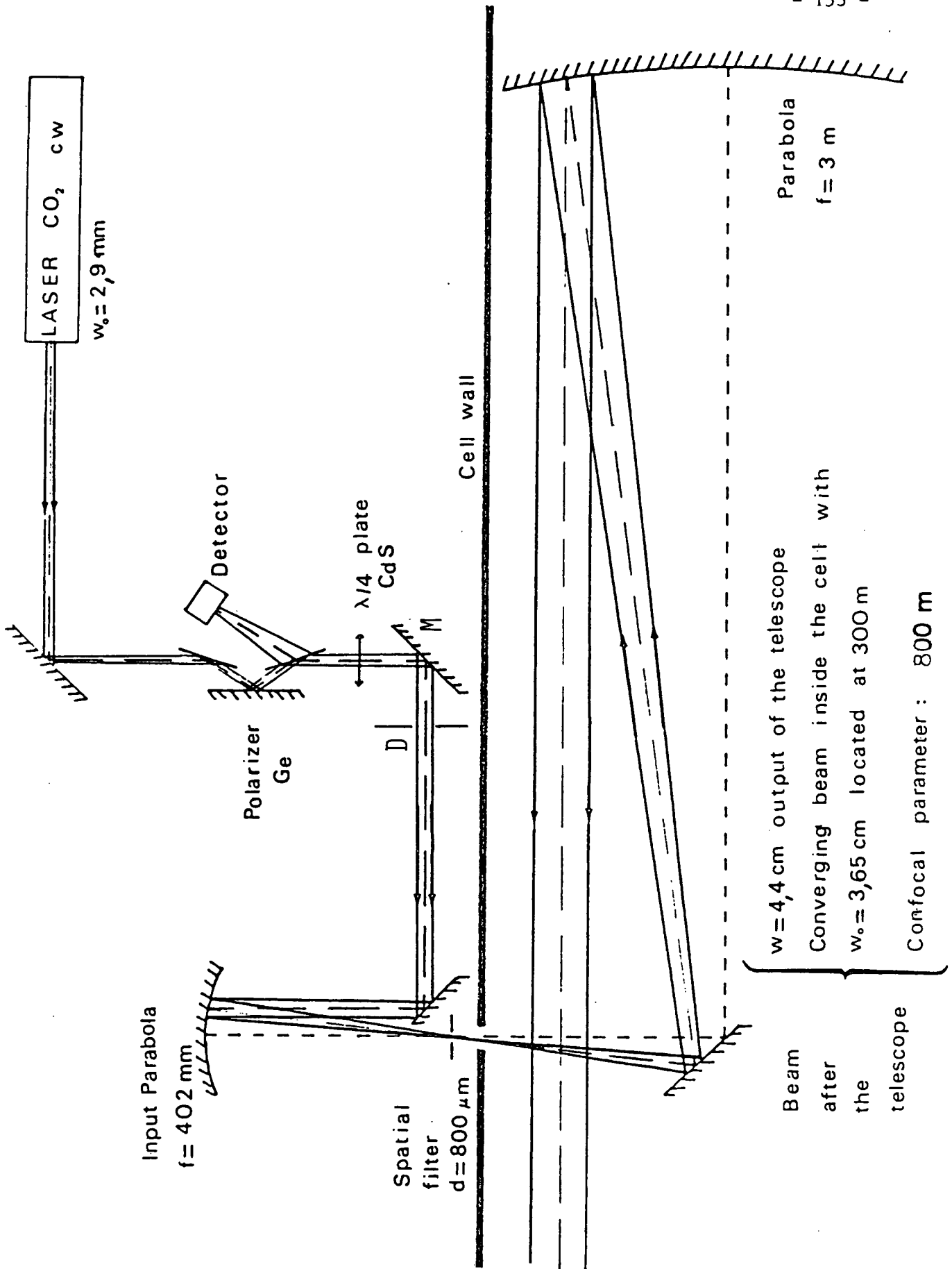


FIGURE 2.6.2

Optique d'entrée du faisceau dans la grande cuve

de contacts du coin de cube n° 2; un déplacement de  $\lambda/2$  soit  $5\mu\text{m}$  est obtenu par un voltage de 1600 Volts. Le miroir 4 est également monté sur une céramique piézoélectrique, pour faire un réglage fin de la phase relative des faisceaux. Pour le réglage final du parallélisme entre les faisceaux, les miroirs 3 et 7 sont ajustables par déformation métallique de trois anneaux d'acier inoxydable collés dans la masse du support en aluminium de chaque miroir.

Le réglage de l'ensemble du montage optique a nécessité les étapes suivantes :

1) - Construction d'un interféromètre de Michelson modifié par l'adjonction d'un coin de cube et d'un miroir de mercure [30]. Son ouverture est de 70 mm.

2) - Réglage, à l'aide de cet interféromètre, du parallélisme des faisceaux (I) et (III), par ajustement du miroir (3), ajustement qui doit rester stable dans le temps pour toute la durée de l'expérience : plusieurs années. De la même façon, réglage du parallélisme des faisceaux (III) et (II) par ajustement "définitif" du miroir (7). Ces réglages se font à l'aide d'un laser He-Ne à  $6328\text{ \AA}$ .

3) - Réglage de l'optique d'entrée de ce système. Le faisceau infrarouge est agrandi et positionné convenablement sur la parabole (1) de la Fig. 2.6.2. La géométrie du faisceau est mesurée à diverses distances à l'aide d'un détecteur mobile.

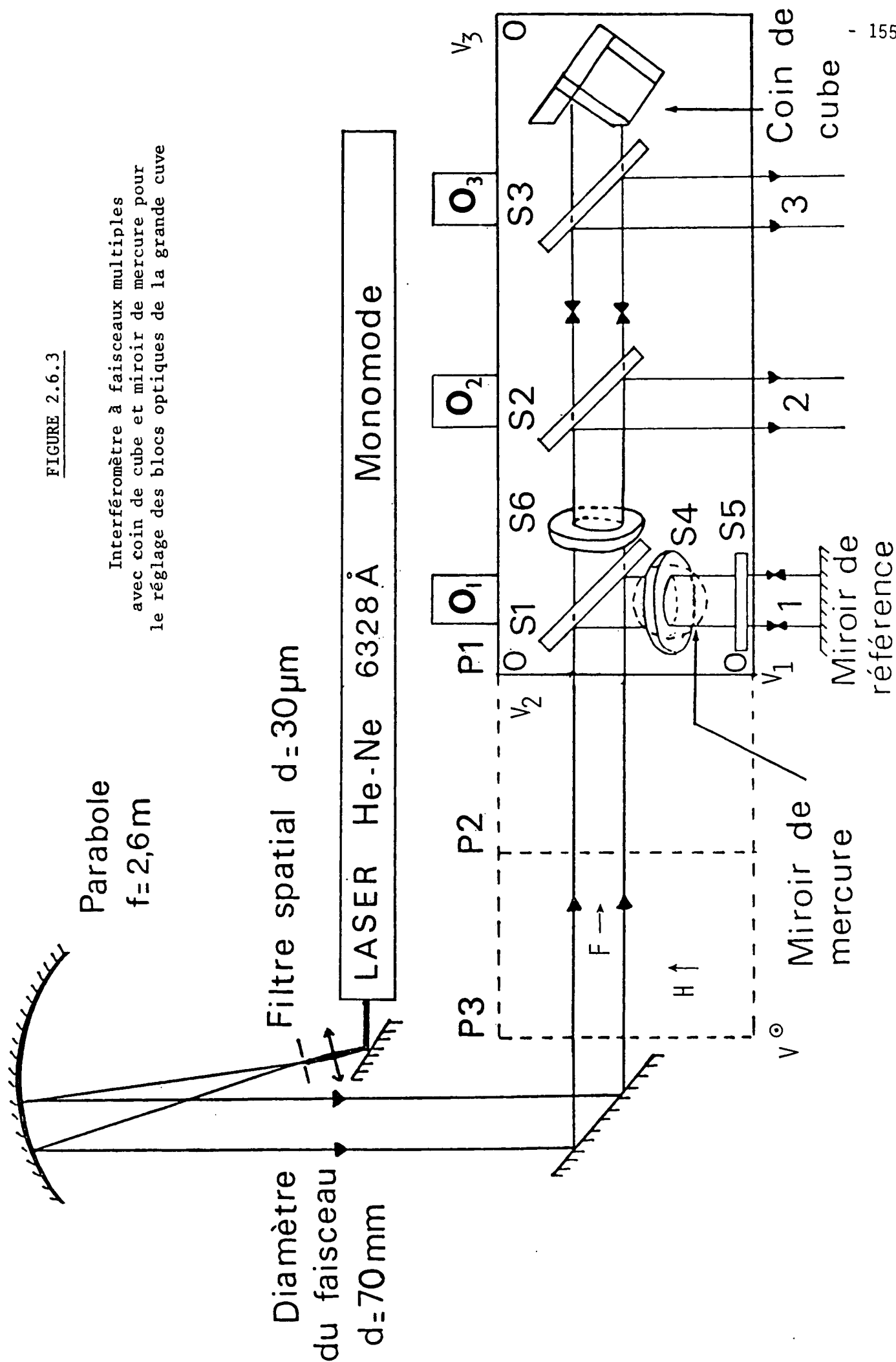
4) - Insertion des blocs optiques (A) et (B) dans la cuve d'absorption et translations verticales et horizontales de ces blocs, de façon à superposer spatialement les faisceaux aller et retour.

#### 2.6.1 L'INTERFEROMETRE DE MICHELSON MODIFIE (I.M.M.)

C'est un interféromètre mobile, destiné à fournir deux ou trois faisceaux parallèles à quelques  $10^{-6}$  radian près, ces faisceaux étant séparés spatialement de la distance entre zones pour les franges :  $L = 27\text{ cm}$ . En venant alors placer les blocs optiques (A) ou (B) en face de l'interféromètre, il sera possible d'ajuster les miroirs (3) et (7) de façon à obtenir une frange d'interférence "plate" entre les faisceaux du Michelson et les

FIGURE 2.6.3

Interféromètre à faisceaux multiples  
avec coin de cuve et miroir de mercure pour  
le réglage des blocs optiques de la grande cuve



faisceaux passant dans l'optique des blocs. Les faisceaux entrant et sortant des blocs optiques seront alors dits parallèles à une fraction de frange d'interférence près.

Cet interféromètre, présenté sur la Fig. 2.6.3 est similaire à celui développé par R.L. BARGER pour ses expériences à très haute résolution sur le calcium dans le visible [22,107]. Il possède cependant un coin de cube rétrorélecteur à la place d'un oeil de chat et une optique de diamètre beaucoup plus important : 70 mm. Il comporte six séparatrices, un miroir de mercure et un coin de cube.

L'originalité de cet interféromètre réside dans l'utilisation d'un coin de cube (ou d'un oeil de chat) à la place de l'un des miroirs plans de l'interféromètre de Michelson, ce qui lui confère une sensibilité interférométrique aux déviations angulaires. Ceci est illustré sur la Fig. 2.6.4 (a) et (b).

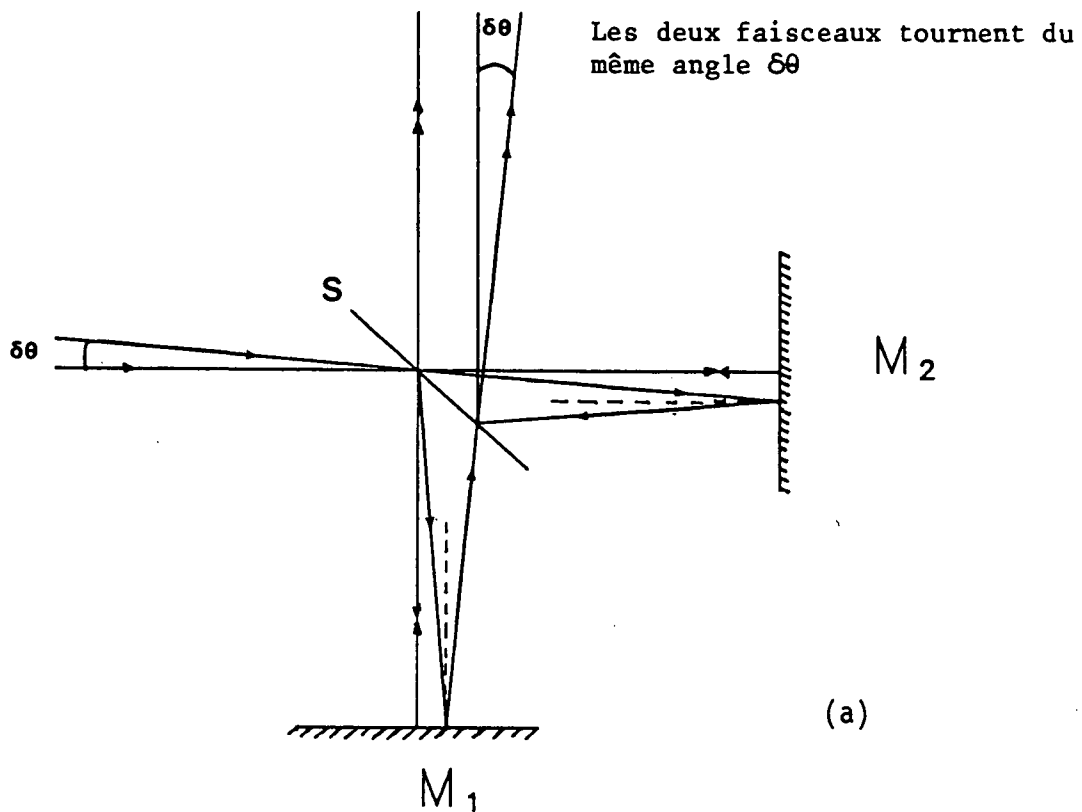
Alors que l'interféromètre de Michelson n'est pas sensible à un petit changement angulaire  $\delta\theta$  du faisceau incident (les faisceaux réfléchis par les deux bras tournent du même angle  $\delta\theta$ ), l'interféromètre de Michelson modifié (I.M.M.) présente une sensibilité angulaire proportionnelle à  $2\delta\theta$ . Le système de franges de l'I.M.M. est donc sensible à l'angle d'incidence et de très faibles déviations angulaires peuvent ainsi être mesurées. A titre d'exemple, une sensibilité de  $10^{-11}$  radian pour une seconde d'intégration a été obtenue par R.L. BARGER à l'aide d'un tel interféromètre muni d'une diode à quatre quadrants détectant une non-uniformité des franges dans deux directions orthogonales.

L'étude et la stabilisation des fluctuations angulaires d'un faisceau laser est un sujet de recherche, encore très peu exploré, que nous avons entrepris.

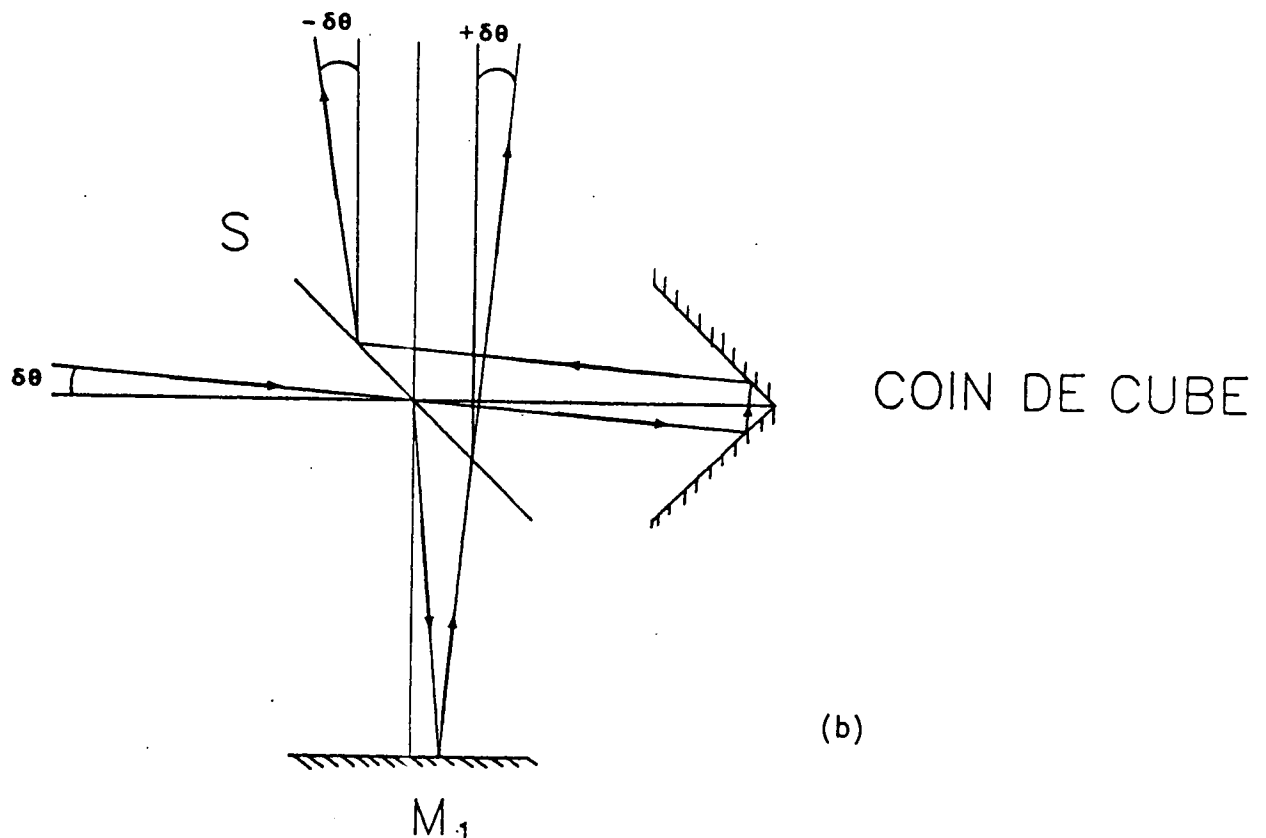
L'interféromètre que nous avons développé utilise un laser He-Ne à 6328 Å de quelques 5 à 10 mW, rendu monomode par un étalon Fabry-Perot intracavité. Un filtre spatial de diamètre 30  $\mu\text{m}$ , au foyer d'une parabole de focale 2,6 m fournit un faisceau de diamètre 70 mm dont le front d'onde est plan à mieux que  $\lambda/10$  dans le visible et dont la direction sera supposée stable pendant toute la procédure de réglage de l'interféromètre (environ une heure par expérience).

Les six séparatrices  $S_i$  ( $i = 1,6$ ) de diamètre 150 mm, en borosilicate,

# INTERFEROMETRE DE MICHELSON



# INTERFEROMETRE DE MICHELSON MODIFIE



**FIGURE 2.6.4** - Sensibilité angulaire de l'interféromètre de Michelson avec un coin de cube. Le système de franges est sensible à  $2\delta\theta$  par opposition à l'interféromètre de Michelson classique où les franges sont insensibles au décalage angulaire du faisceau d'entrée



à faces parallèles, traitées : sur la face avant pour obtenir un coefficient de réflexion de l'ordre de 30% , antireflets sur la face arrière ( $S_6$  n'est qu'une séparatrice de compensation de hauteur) et le coin de cube, sont montés sur une plate-forme (80 cm x 50cm) d'épaisseur 30 mm orientable suivant trois directions perpendiculaires à l'aide de quatre vis micrométriques. Cette plate-forme repose sur une seconde plaque d'aluminium qui permet, par roulement sur un ensemble de billes, le déplacement de l'ensemble : positions  $P_1$  ,  $P_2$  ,  $P_3$  sur la Fig. 2.6.3. Le miroir de mercure repose sur cette plaque. Il est essentiel que ce déplacement soit suffisamment doux. pour ne pas dérégler l'ajustement interférométrique des séparatrices de l'I.M.M.. L'ensemble de l'interféromètre se déplace sur une plaque massive d'aluminium scellée dans la dalle en béton qui supporte l'expérience, et indépendante du reste de l'optique (miroir de référence et faisceau laser agrandi).

Les séparatrices  $S_2$  ,  $S_3$  ,  $S_5$  sont montées sans contrainte dans des supports Micro-contrôle à vis différentielles. Nous avons vérifié que la dérive de ces vis n'était pas supérieure à quatre franges par 24 heures.

La planéité optique des six séparatrices après traitement varie entre 1/4 de frange, et 1/2 frange, sur 8 cm de diamètre, suivant les exemplaires.

Le miroir de mercure de diamètre 10 cm sert de référence de verticale. L'influence de la courbure terrestre sur la surface libre du mercure est de l'ordre de  $2 \times 10^{-9}$  radian et donc tout à fait négligeable dans nos expériences.

La très grande sensibilité aux vibrations du mercure a été extrêmement réduite par l'utilisation d'un récipient en plomb qui "mouille" le mercure et dont le fond est gravé de nombreuses petites alvéoles qui atténuent les ondes se propageant à la surface du liquide.

Le coin de cube rétrorélecteur doré a une ouverture de 80 mm environ et présente une planéité d'environ une frange sur toute son ouverture (soit  $7 \times 10^{-6}$  radian ou 1,4 s d'arc pour la qualité de la perpendicularité des faces).

## 2.6.2 LA PROCEDURE DE REGLAGE DES BLOCS OPTIQUES [ 107,30 ]

Elle est schématiquement présentée sur la Fig. 2.6.3.

Le faisceau rouge incident  $F$ , la verticale  $V$  définie par la normale à la surface du miroir de mercure et la direction  $H$  perpendiculaire à  $F$  et  $V$ , définissent trois directions de référence pour l'interféromètre.

Une position angulaire fixe de la plate-forme de l'I.M.M. est obtenue en ajustant les séparatrices  $S_1$ ,  $S_4$  et  $S_5$  de façon à obtenir deux systèmes de franges à teinte uniforme au point d'observation  $O_1$ . Le premier système de franges provient des faisceaux réfléchis par le miroir de mercure (M.Hg) et le coin de cube (c.c.), et définit la rotation autour de deux axes orthogonaux : la direction du faisceau rouge incident ( $F$ ) et la direction sensiblement horizontale qui lui est perpendiculaire ( $H$ ). Le second système de franges provient des réflexions sur  $S_5$  et le coin de cube (c.c.); il définit, outre la rotation autour de  $F$ , la rotation autour du troisième axe, orthogonal aux deux précédents et sensiblement vertical ( $V$ ). Dorénavant, les ajustements de  $S_1$ ,  $S_4$  et  $S_5$  seront considérés comme fixes. La plate-forme de l'I.M.M. peut être déplacée en bloc et à nouveau positionnée angulairement de façon identique (par rapport à  $F$ ,  $H$  et  $V$ ), en orientant la plate-forme elle-même à l'aide des vis  $V_1, V_2, V_3, V_4$ , de façon à retrouver les deux systèmes de franges provenant de  $S_5$  et c.c. et M.Hg et c.c. .

Il est clair que ce positionnement angulaire ne fixe pas la translation de l'interféromètre dans le plan de la table (dans les limites de l'ouverture de l'optique !). Ayant ainsi un moyen de positionner interférométriquement la plate-forme de l'I.M.M. par rapport à  $F$ ,  $H$  et  $V$ , il est ensuite aisé de régler le parallélisme des trois faisceaux (1), (2) et (3). La plate-forme étant en position  $P_1$ , le miroir de référence (M.R.) est ajusté de façon à produire une teinte uniforme pour les franges d'interférence de type Fabry-Perot avec  $S_5$ , au point d'observation  $O_1$ , le faisceau se dirigeant vers c.c. étant bloqué. Ce miroir de référence définit la direction (1).

Puis la plate-forme de l'I.M.M. est translatée (lentement sur des billes pour ne pas dérégler les ajustements de  $S_1$ ,  $S_4$  et  $S_5$ ) en position  $P_2$  où la séparatrice  $S_2$  est en face du miroir de référence. La plate-forme de l'I.M.M. est orientée à nouveau de façon à retrouver en  $O_1$  translaté les franges provenant de  $S_5$  et c.c. d'une part et de M.Hg et c.c. d'autre part. Alors

seulement, la séparatrice  $S_2$  est ajustée pour obtenir en  $O_2$  (translaté) une teinte d'interférence uniforme entre le faisceau réfléchi par M.R. et le faisceau provenant de c.c.. Les faisceaux (1) et (2) seront alors parallèles à une fraction de frange près (dans le visible). De la même façon le faisceau (3) est rendu parallèle aux faisceaux (1) et (2) en translatant la plate-forme de l'I.M.M. en position  $P_3$ , en recouvrant les systèmes de franges en  $O_1$  qui définissent la position angulaire de la plate-forme et en ajustant finalement la séparatrice  $S_3$ , pour obtenir une teinte uniforme en  $O_3$  (translaté) pour les franges provenant du miroir de référence et du coin de cube.

En enlevant ensuite, le miroir de référence, les trois faisceaux parallèles précédents viennent illuminer l'un ou l'autre des deux systèmes rétroreflecteurs (blocs A et B). Les miroirs (3) du bloc A ou (7) du bloc B sont alors ajustés de façon à observer une teinte d'interférence uniforme en  $O_1$ ,  $O_2$  ou  $O_3$ . (De nombreux systèmes de franges peuvent être observés !!). Ceci assure un parallélisme rigoureux entre le faisceau entrant dans le bloc rétroreflecteur et le faisceau sortant. Le système de franges le plus utile (car le plus sensible) provient de l'interférence entre les trajets ( $S_1$ , bloc A,  $S_2$ ,  $S_1$ ,  $O_1$ ) et ( $S_1$ ,  $S_2$ , bloc A,  $O_1$ ). Ce système de franges en  $O_1$ , présente une sensibilité  $2\alpha$  à un léger dérèglement angulaire  $\alpha$  du miroir 3, à cause du trajet des deux faisceaux se propageant en sens inverse dans le rétroreflecteur. Il est de plus complètement insensible aux vibrations des blocs optiques, car elles affectent de la même façon les deux trajets optiques qui interfèrent.

L'ensemble de cette procédure de réglage nécessite environ une heure. Un nombre important d'expériences a permis d'estimer la reproductibilité de l'ensemble du réglage à une frange dans le rouge soit  $\sim \lambda/30$  à  $10 \mu\text{m}$ . La partie la plus délicate est le déplacement de la plate-forme, sans affecter les réglages des séparatrices  $S_1$ ,  $S_4$  et  $S_5$ . Deux vérifications successives du parallélisme des faisceaux effectuées à un mois d'intervalle ne différaient que par moins d'une frange dans le rouge (soit l'incertitude de mesure) et permettent d'espérer une très bonne stabilité à long terme du réglage effectué par les déformations métalliques.

Par ailleurs, le montage similaire de R.L. BARGER dans le visible (quoique de plus petites dimensions), n'a nécessité aucune retouche sur une durée de l'ordre de deux ans, alors que la condition de parallélisme entre

les faisceaux est 16 fois plus astreignante.

En conclusion, les systèmes optiques rétrorélecteurs, ainsi réglés dans le visible, assurent un parallélisme entre faisceaux entrants et sortants de l'ordre de  $5 \times 10^{-6}$  radian soit  $\lambda/30$  environ sur les 11 cm de l'ouverture optique des faisceaux infrarouges.

### 2.6.3 REGLAGE DE L'OPTIQUE D'ENTREE DU SPECTROMETRE

La Fig. 2.6.2 présente le système optique utilisé.

Le faisceau issu du laser  $\text{CO}_2$  contrôlé en fréquence par la boucle à verrouillage de phase et utilisé pour sonder l'absorption dans la grande cuve, présente une polarisation linéaire verticale. Il traverse tout d'abord un polariseur constitué de deux lames de germanium à incidence de Brewster dont la planéité a été contrôlée interférométriquement à l'aide de l'interféromètre (I.M.M.). Une lame quart d'onde transforme cette polarisation linéaire en une polarisation circulaire gauche.

Le faisceau rétroréfléchi provenant de la grande cuve, à cause du nombre impair de réflexions sur les miroirs et coins de cube verra sa polarisation devenir circulaire droite avant passage dans la lame quart d'onde. Cette nouvelle traversée aura pour conséquence de rendre rectiligne la polarisation, mais orthogonale à la polarisation du faisceau incident. Le faisceau retour sera alors totalement transmis par la première lame de Brewster du polariseur et dirigé vers un détecteur HgCdTe. (Ce système est analogue à celui de la boucle de référence).

Puis, un télescope de grandissement  $\sim 7$  est destiné à produire une onde gaussienne de front d'onde aussi plan que possible; ce télescope est constitué de deux paraboloïdes de révolution dorés (de focales 402 mm et 3 mètres) qui permettent de minimiser les aberrations sphériques et dont les axes ont été soigneusement superposés. Un filtre spatial en zérodur de diamètre 800  $\mu\text{m}$  (pin-hole constitué par l'intersection de deux sphères coaxiales pour éviter les problèmes de rétrodiffusion vers le laser) fournit un faisceau approximativement gaussien (à quelques pour cent près). L'efficacité de ce filtrage spatial est démontrée sur la Figure 2.6.5(a).

Un pré-alignement dans le rouge à l'aide du faisceau agrandi de diamètre 80 mm provenant de l'interféromètre de Michelson modifié et envoyé dans la cuve d'absorption en sens inverse du faisceau infrarouge, a permis la mise en place des deux paraboles. Un laser He-Ne supplémentaire

# PROFIL HORIZONTAL DU FAISCEAU LASER L1

- 162 -

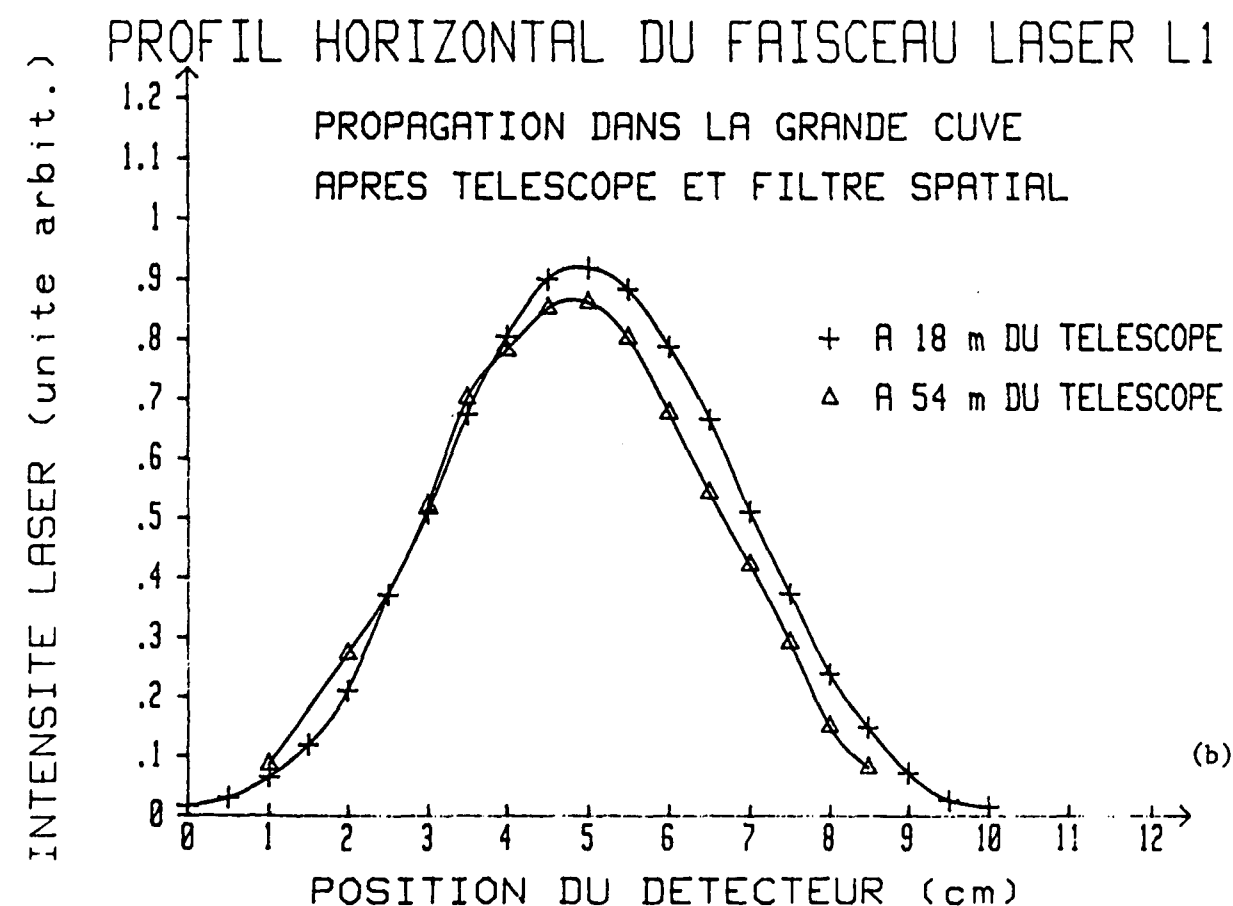
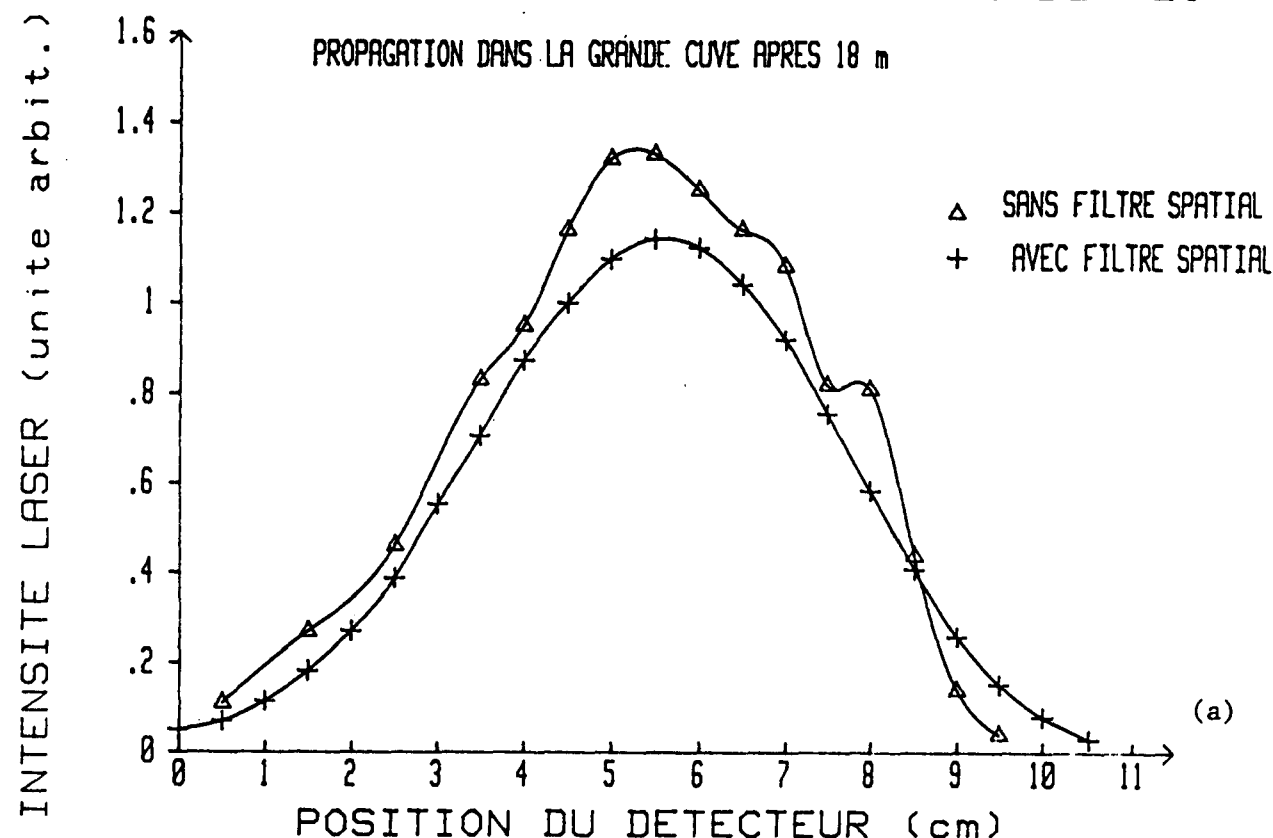


FIGURE 2.6.5 - Profils horizontaux du mode d'émission du laser L1 enregistrés après passage dans le télescope d'entrée de la grande cuve. Les courbes (a) démontrent l'efficacité du filtre spatial de diamètre  $800\text{ }\mu\text{m}$  placé au point focal du télescope. (b) Profils horizontaux du faisceau laser L1 (à 18 m et 54 m du télescope), utilisés pour déterminer les caractéristiques du faisceau gaussien.

matérialisait également l'axe commun des deux paraboles et a permis le positionnement précis du filtre spatial.

Puis un second faisceau rouge, superposé au faisceau infrarouge incident, ayant un paramètre confocal  $b = kw_0^2$  voisin de celui du faisceau infrarouge ( $w_0 \sim 3$  cm) a permis un premier réglage des distances focales des deux paraboles et la superposition de leurs foyers respectifs tout en gardant leurs axes superposés.

Enfin, l'ajustement final a été effectué sur le faisceau à  $10,6 \mu\text{m}$  lui-même, en mesurant à l'aide d'un détecteur mobile, la taille du faisceau agrandi, à diverses distances (18 m, 36 m, et 54 m).

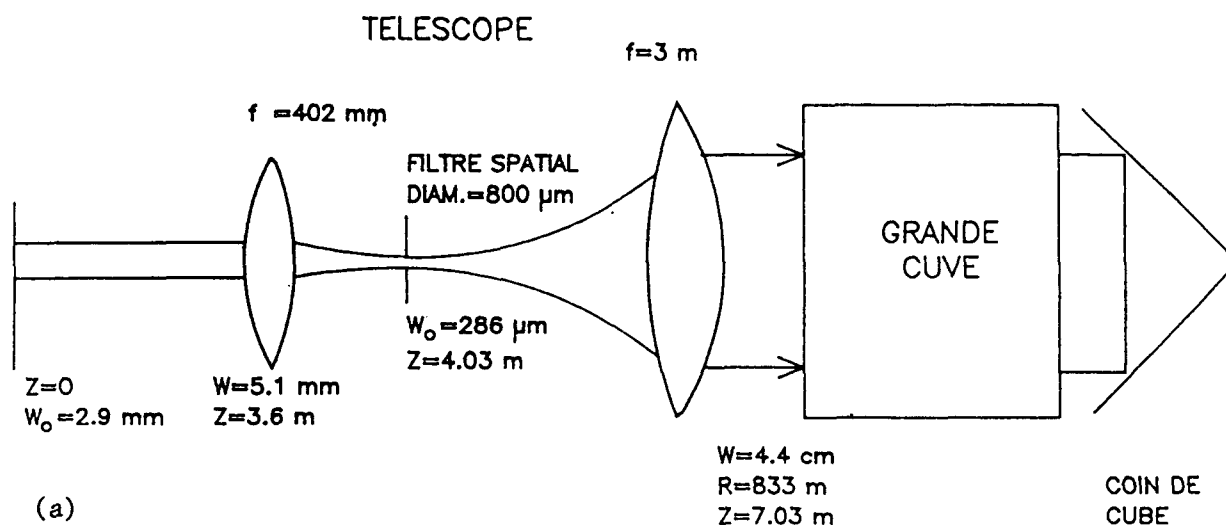
La distance du filtre spatial à la parabole primaire du télescope a été ajustée (à  $10,6 \mu\text{m}$ ) en maximisant la transmission du faisceau dans le filtre spatial. Pour ce faire, un miroir plan recueille toute la lumière traversant le filtre spatial et l'envoie sur un détecteur HgCdTe auxiliaire.

Les mesures à deux distances du diamètre du faisceau,  $2w$ , permettent comme nous l'avons vu, de déterminer la distance au waist, la valeur du waist ( $w_0$ ), et la courbure du front d'onde en chaque point. Les formules de propagation des faisceaux gaussiens dans l'espace libre, ou avec des éléments optiques tels que les deux paraboles permettent en retour de calculer les distances réelles entre ces éléments optiques.

La Fig. 2.6.5 (b) présente les profils horizontaux du faisceau après 18 m et 54 mètres de propagation libre après la parabole de focale 3 mètres.

Après un ensemble de mesures obtenues en faisant varier la distance entre les deux paraboles et la position du pin-hole, nous sommes parvenus à donner au faisceau les caractéristiques présentées sur la Fig. 2.6.6 . . Par ailleurs, une simulation numérique de notre montage optique a été effectuée par M. DAVIT, des laboratoires de Marcoussis de la C.G.E., (en utilisant cependant des miroirs sphériques et non paraboliques, mais l'on peut montrer que les corrections apportées sont très faibles ( $\sim \lambda/100$ )); cette simulation est en très bon accord avec nos valeurs calculées ou mesurées. La distance théorique pin-hole-parabole, de 430 mm, est à  $1/2$  mm de la valeur mesurée 430,5 mm. Cette simulation numérique prédit également un astigmatisme négligeable pour notre système. A l'aide d'une lame à face parallèle, nous avons vérifié sur le faisceau rouge incident (de diamètre 30 mm) superposé au faisceau infrarouge, que la planéité du front d'onde

# CARACTERISTIQUES GEOMETRIQUES DU FAISCEAU ISSU DU LASER L1



## PROPAGATION DU FAISCEAU DANS LA GRANDE CUVE

PARABOLE  $f=3$  m

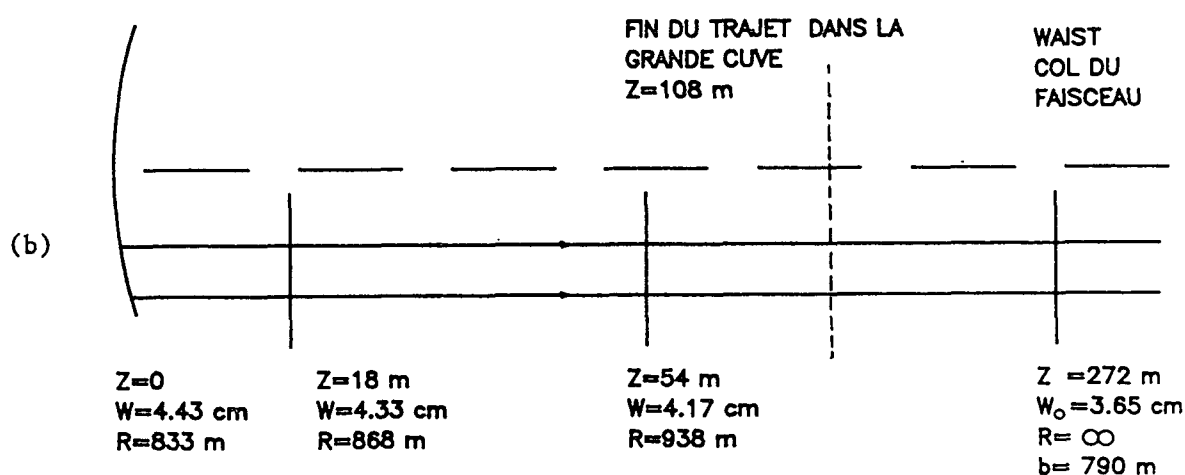


FIGURE 2.6.6 -

- (a) Caractéristiques géométriques du faisceau issu du laser L1. Après une propagation libre sur 3,6 m, le faisceau est agrandi sept fois par le télescope d'entrée de la grande cuve (longueur : 18 m).
- (b) La mesure des profils du faisceau à différentes distances permet de reconstituer la propagation du faisceau après le télescope.

après traversée du télescope était meilleure que  $\lambda/4$  sur 30 mm d'ouverture, à 6328 Å, et ne présentait pas d'astigmatisme décelable.

En conclusion, la planéité du front d'onde du faisceau infrarouge est toujours meilleure que  $\lambda/7$  à  $\lambda/10$  suivant la distance au waist du faisceau.

#### 2.6.4 INSERTION DES BLOCS OPTIQUES DANS LA GRANDE CUVE

En dernier lieu, les blocs optiques rétrorélecteurs sont introduits dans la cuve d'absorption. A l'aide d'un faisceau rouge parfaitement superposé au faisceau infrarouge, les trois faisceaux constituant l'onde stationnaire sont mis dans le même plan par translation verticale des blocs (A) et (B); ce plan est le plan horizontal passant par l'axe de la parabole d'entrée.

Enfin, un diaphragme et le filtre spatial placés à l'extérieur de la cuve définissent en orientation et en translation la position du faisceau laser incident, de façon à ce que la zone (1) soit toujours correctement située dans la cuve d'absorption. (Voir la Fig. 2.6.2). A cet effet, un détecteur HgCdTe auxiliaire recueille alternativement toute la lumière franchissant soit le diaphragme, soit le filtre spatial. En optimisant l'énergie franchissant le diaphragme, puis, à l'aide du seul miroir M, en optimisant l'énergie franchissant le filtre spatial, le faisceau laser est correctement positionné dans la grande cuve après quelques itérations (3 ou 4 au plus). Nous avons vérifié que le profil du faisceau agrandi à 18 mètres de distance, ne se déplaçait pas de plus de 1 mm lors de réglages successifs utilisant cette procédure.

On dispose finalement d'une triple onde stationnaire repliée, de diamètre 11 cm, dont les fronts d'ondes sont parallèles et plans à  $\lambda/10$  environ. L'ensemble du trajet optique dans la cuve d'absorption (vide limite :  $7 \times 10^{-7}$  Torr) présente une longueur approximative de 108 mètres et l'atténuation due à la double traversée du filtre spatial et aux 27 réflexions sur les miroirs à revêtement d'or n'est que d'environ 37%.



### 2.6.5 COMPENSATION DU CHAMP MAGNETIQUE TERRESTRE

Le champ magnétique terrestre, qui introduit un effet Zeemann sur les raies de vibration-rotation et qui peut conduire à un élargissement des raies de l'ordre de quelques kHz, peut être réduit au dixième de sa valeur de la façon suivante :

- l'orientation Nord-Sud de la cuve autorise l'usage d'un solénoïde coaxial pour compenser la composante  $B_h$  horizontale du champ terrestre, qui vaut 0,2 Gauss. Une nappe de 36 conducteurs en parallèle, de longueur 600 mètres, a été bobinée autour de la cuve, 1,12 Ampère suffisant à compenser  $B_h$ . Pour la composante  $B_v$  verticale d'environ 0,4 Gauss, deux bobines de Helmholtz rectangulaires situées au-dessus et en-dessous de la cuve d'absorption et parcourues par des courants de même sens, créent au centre de la cuve un champ vertical, lorsque les distances entre conducteurs sont bien choisies. Parcourues par environ 50 Ampères, elles nécessitent une alimentation électrique puissante. Une carte du champ magnétique dans la cuve elle-même a été établie et est présentée sur la Fig. 2.6.7 . Elle démontre que le champ magnétique résiduel n'excède pas 10 % du champ terrestre en tout point à l'intérieur de la cuve.

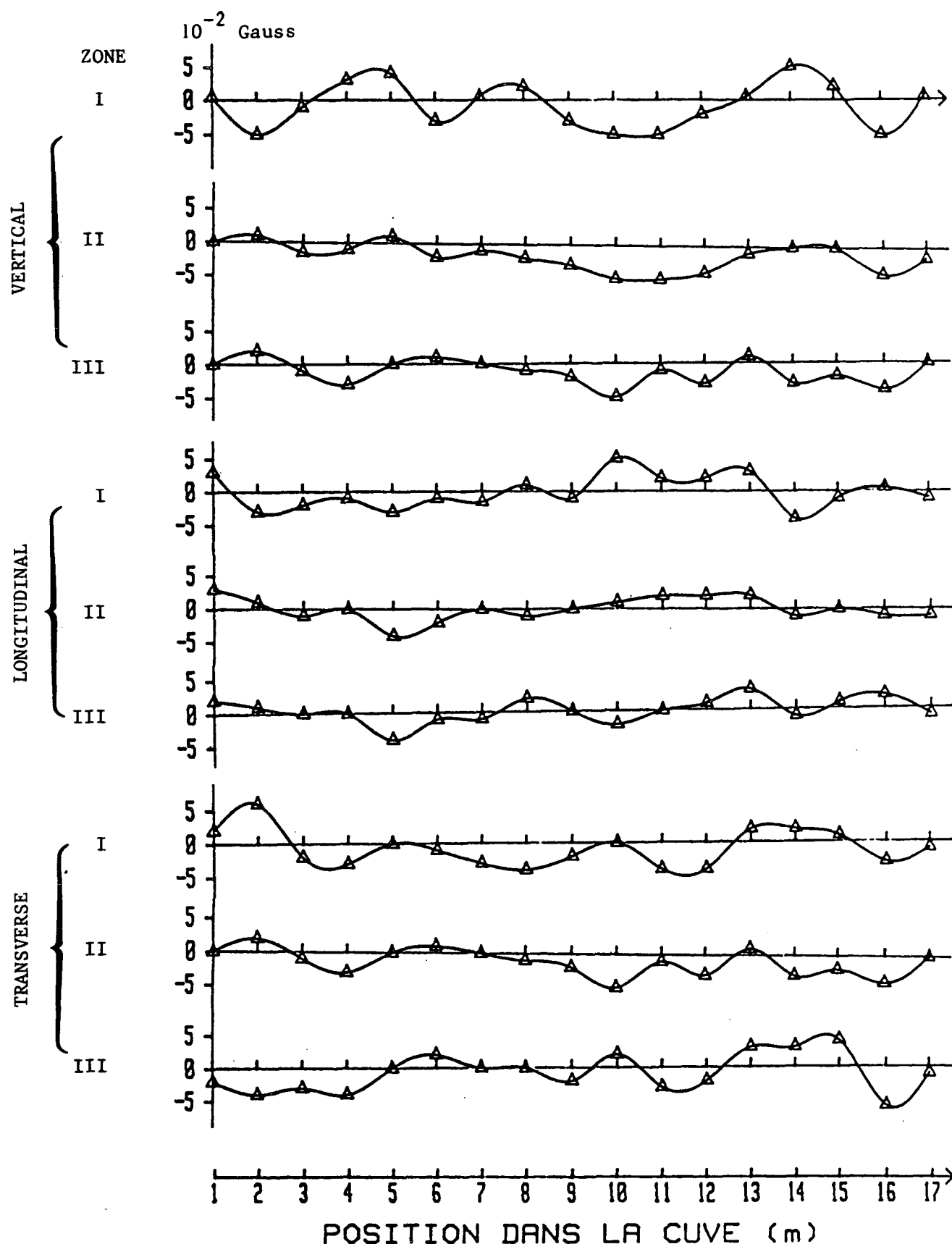


FIGURE 2.6.7 - Carte du champ magnétique dans la grande cuve après compensation du champ magnétique terrestre par 2 bobines de Helmholtz et un solénoïde co-axial. Les trois composantes (verticale, longitudinale (Nord-Sud) et transverse (Est-Ouest)) ont été mesurées dans les trois zones (I,II,III) où le faisceau laser interagit avec les molécules. Se reporter à la Figure 2.6.1 présentant l'optique pour les franges de Ramsey. Cette carte montre que le champ magnétique résiduel est toujours inférieur à  $\pm 5 \times 10^{-2}$  Gauss sur toute la longueur de la cuve.

### CHAPITRE 3

#### LES RÉSULTATS EN CUVE

### 3.1 LES RÉSONANCES DE SATURATION À TRÈS HAUTE RÉOLUTION\*

Comme premier test de la qualité optique des fronts d'ondes et de la pureté spectrale des lasers, il fallait vérifier que la largeur de raie du signal d'absorption saturée (avec une zone d'interaction et 110 mètres de trajet optique) soit effectivement bien limitée par le temps de vol que mettent les molécules à traverser le faisceau de diamètre 11 cm.

En régime de vol libre, l'expression qui donne la limite en champ laser faible pour la demi-largeur à mi-hauteur de la raie de saturation, s'écrit [ 40 ] :

$$\Delta\nu_{1/2} = \frac{1}{8} \frac{u}{w_0} \quad (3.1)$$

$u$  est la vitesse la plus probable,  $u = \sqrt{\frac{2kT}{M}}$

$w_0$  est le "waist" (col) du faisceau (3,65 cm).

Cette limite varie entre 480 Hz pour  $\text{OsO}_4$  et 1,85 kHz pour  $^{14}\text{NH}_3$ .

Pour que cette limite soit effectivement observable, il faut que les nombreux autres facteurs d'élargissement de la raie de saturation (effet de recul, effet Doppler du second ordre, structure hyperfine, effet Zeeman résiduel, élargissement collisionnel, élargissement par modulation, élargissement par saturation) soient réduits, négligeables, ou inexistants (structure hyperfine bien résolue par exemple). Le tableau 3.1 présente, pour quelques molécules ayant une ou plusieurs bandes d'absorption dans la région spectrale de 10  $\mu\text{m}$ , les paramètres physiques essentiels et leur influence sur la largeur de raie.

Il apparaît alors clairement que les molécules  $^{189}\text{OsO}_4$ ,  $^{190}\text{OsO}_4$ ,  $^{192}\text{OsO}_4$ ,  $\text{CHFCII}$ ,  $^{32}\text{SF}_6$ , doivent permettre l'observation de demi-largeurs de raie inférieures au kHz. La forte masse de la molécule  $\text{OsO}_4$  ( $\approx 256$ ) ainsi que l'absence de structure hyperfine pour  $^{190}\text{OsO}_4$  et  $^{192}\text{OsO}_4$  font de cette molécule une bonne candidate pour un étalon secondaire de fréquence dans l'infrarouge (effet de recul et effet Doppler du second ordre de quelques Hz). Voir le paragraphe 3.6 sur les résultats métrologiques.

Les figures 3.1.1 à 3.1.6 présentent les largeurs de raies les plus étroites que nous ayons observées avec ce montage, pour  $\text{SF}_6$ ,  $\text{OsO}_4$ ,  $^{15}\text{NH}_3$  et  $\text{SiH}_4$ . Pour des pressions dans la grande cuve de l'ordre de  $10^{-5}$  Torr, les figures 3.1.7 et 3.1.8 indiquent que l'élargissement collisionnel est d'environ 200 à 250 Hz pour les molécules  $\text{SF}_6$  et  $\text{OsO}_4$ . Dans ces conditions, avec une

---

\* Les paragraphes 3.1 à 3.4 et 3.6 de ce chapitre, rédigés en collaboration avec Ch. BREANT, feront également partie de sa thèse d'Etat (1984).

TABLEAU 3.1

PARAMETRES PHYSIQUES INTERVENANT EN SPECTROSCOPIE DE SATURATION A ULTRA-HAUTE RESOLUTION,  
POUR QUELQUES MOLECULES PRESENTANT UNE OU PLUSIEURS BANDES D'ABSORPTION DANS LA REGION SPECTRALE DE 10 MICRONS

MOLECULE	MASSE ATOM.	VITESSE LA PLUS PROBABLE $u = \sqrt{2kT/M}$ A 300K (m/s)	LARGEUR TEMPS DE VOL $u/\delta w$ HWHM (Hz)	FRANGES DE RAMSEY $2L=54\text{cm}$ HWHM (Hz)	EFFET DE RECU $2\delta = h/\lambda M$ (Hz)	DEPLAC. EFFET DOPPLER 2 <sup>o</sup> ORDRE (Hz)	LARGEUR DE RAIE OBSERVEE HWHM (Hz)	SPINS NUCLEAIRES	STRUCTURE HYPERFINE D.M. Q.E.	FACTEURS DE LANDÉ		MOMENT DE TRAN- SITION (Debye)	ELARGISSEMENT COLLISIONNEL (FWHM) **	
										rot. $g_J$	nucl. $g_I$		$\geq 10^{-2}$ Torr (MHz/T)	$\sim 10^{-5}$ Torr (MHz/T)
$^{192}\text{OsO}_4$	256	140	480	65	15	- 3.3	680	0	SANS			0.17	13	20
$^{190}\text{OsO}_4$	254	140	480	65	15	- 3.3		0	SANS			0.17	13	20
$^{189}\text{OsO}_4$	253	140	480	65	15	- 3.3		$\text{Os} = \frac{3}{2}$	Q.E.			0.17	13	20
CHFCII	194	160	548	74	20	- 4.3	*	$\text{H} = \frac{1}{2} \text{F} = \frac{1}{2} \text{Cl} = \frac{3}{2} \text{I} = \frac{5}{2}$	D.M. Q.E.					
$\text{SF}_6$	146	185	634	86	26	- 5.7	900	$\text{F} = \frac{1}{2}$	D.M.	0.037	5.255	0.4	17	26
$\text{C}_2\text{F}_2\text{Cl}_2$	132	194	664	90	29	- 6.3	*	$\text{Cl} = \frac{3}{2} \text{F} = \frac{1}{2}$	D.M. Q.E.					
$\text{PF}_5$	128	199	682	92	30	- 6.6	1700	$\text{P} = \frac{1}{2} \text{F} = \frac{1}{2}$	D.M.					
$^{28}\text{SiF}_4$	104	219	750	101	37	- 8.0		$\text{F} = \frac{1}{2}$	D.M.				8	
$\text{O}_3$	48	323	1106	149	80	- 17.3	*	0	SANS					
$^{30}\text{SiH}_4$	34	383	1312	177	113	- 24.4		$\text{H} = \frac{1}{2}$	D.M.			0.14 ( $\frac{1}{3}$ )		
$^{29}\text{SiH}_4$	33	389	1332	180	116	- 25.2	2200	$\text{Si} = \frac{1}{2} \text{H} = \frac{1}{2}$	D.M.			0.23 ( $\frac{1}{4}$ )		
$^{28}\text{SiH}_4$	32	395	1352	183	120	- 26.0		$\text{H} = \frac{1}{2}$	D.M.	0.27				
$\text{CH}_3\text{OH}$	32	395	1352	183	120	- 26.0	*	$\text{H} = \frac{1}{2}$	D.M.	0.078				
$^{15}\text{NH}_3$	18	527	1805	244	215	- 46.0	1900	$\text{N} = \frac{1}{2} \text{H} = \frac{1}{2}$	D.M.	0.5		0.23	23	
$^{14}\text{NH}_3$	17	542	1856	251	228	- 48.9	*	$\text{N} = 1 \text{H} = \frac{1}{2}$	D.M. Q.E.	0.5		0.23	23	

\* Dans ce cas, la résonance de saturation, de largeur 10-20 kHz à mi-hauteur, n'a pas été enregistrée à l'aide d'un laser contrôlé en fréquence, mais à l'aide d'un laser libre.

\*\* Noter qu'à très haute résolution ( $\sim 10^{-5}$  Torr), l'élargissement collisionnel est très supérieur à la valeur mesurée pour des pressions supérieures au millitorr. Ceci provient de l'effet des collisions élastiques d'angle faible [42].

puissance laser de quelques (1-5) microwatts, la limite liée au temps de vol est pratiquement atteinte. Quelles sont les causes d'élargissement résiduel, une puissance de 1  $\mu$ Watt correspond-elle effectivement à un champ faible, quel est l'ordre de grandeur du signal de saturation et la limite de détectivité du spectromètre de saturation sous sa forme actuelle? Telles sont les questions abordées dans la suite de ce chapitre (paragraphe 3.2 à 3.4). Puis seront présentés, au paragraphe 3.5, quelques résultats de physique moléculaire qui ont pu être mis en évidence grâce au pouvoir de résolution supérieur à  $10^{10}$  du spectromètre de saturation que nous venons de décrire : structures fines, superfines, et superhyperfines dans la bande  $\nu_3$  de la molécule  $\text{SF}_6$ , structures hyperfines quadrupolaires électriques dans la bande  $\nu_3$  de  $\text{OsO}_4$  et structures hyperfines dans la bande  $\nu_2$  de l'ammoniac.

Enfin, le paragraphe 3.6 présente les résultats d'intérêt métrologique.

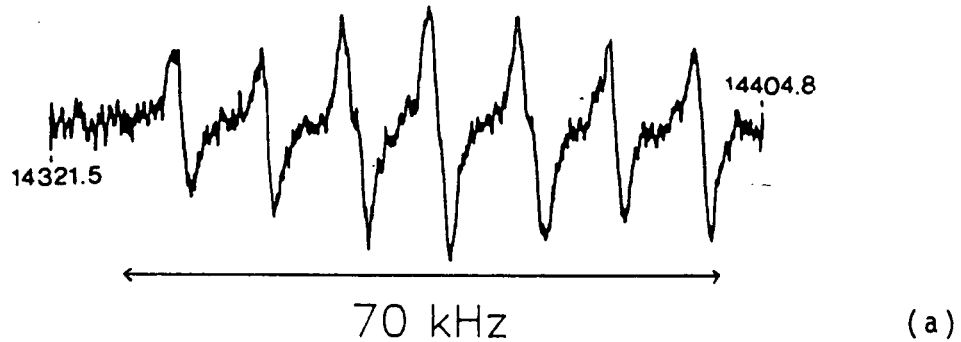
Fig. 3.1.1 - Spectres de la raie R28  $A_2^0$  de la bande  $\nu_3$  de  $SF_6$ , enregistrés avec une pression de  $10^{-5}$  Torr dans la cuve et une intensité laser d'environ  $2 \mu W$ . (L'élargissement par saturation à  $2 \mu W$  de puissance n'est pas négligeable sur ces enregistrements, voir Fig. 3.1.2).

- (a) Fréquence de modulation ( $f = 180$  Hz)  $\ll$  largeur de raie (1,2 kHz) et détection à la fréquence  $f$ . Un seul balayage en fréquence de constante de temps 1 s et de durée 15 mn. Les fréquences sont en kiloHertz à partir de la raie de référence de  $^{192}OsO_4$  à 28464 676 938,5 kHz.
- (b) Fréquence de modulation ( $f = 97,329$  kHz)  $\gg$  largeur de raie (1,2 kHz) et détection à la fréquence  $f$ . Seule la composante du profil d'absorption centrée à  $\nu_0 + f/2$  est représentée ici. ( $\nu_0$  est la fréquence de la transition moléculaire). Accumulation après dix balayages de constante de temps individuelle, 30 ms. Le laser de référence est verrouillé sur la même résonance de  $^{192}OsO_4$  qu'au (a).

SF6 R28 A<sub>2</sub><sup>o</sup>

DEMI-LARGEUR A MI-HAUTEUR:1.2 kHz

FREQUENCE DE MODULATION:180 Hz



FREQUENCE DE MODULATION:97.329kHz

FREQINIT= 1.437927E+7 FREQFIN= 1.445601E+7 Hz  
MOYENNE APRES 10 BALAYAGES DE DUREE 33 S

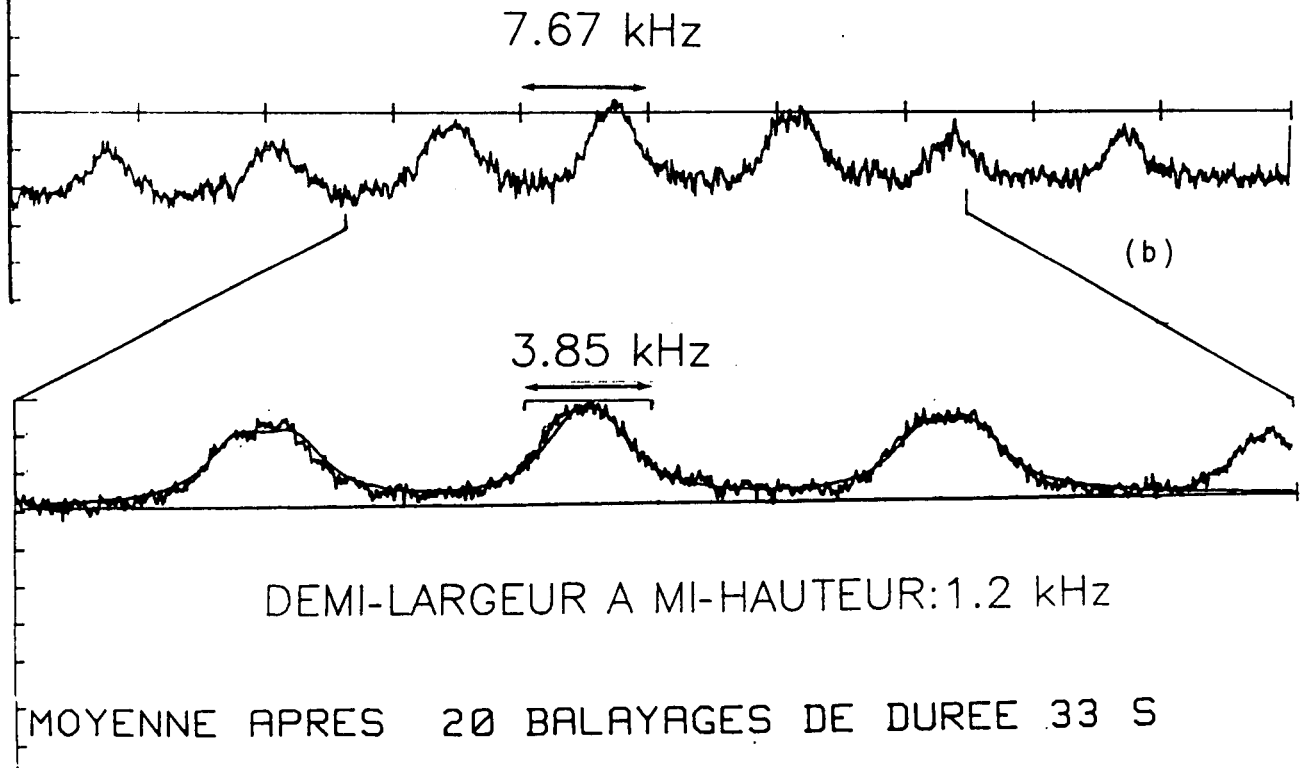


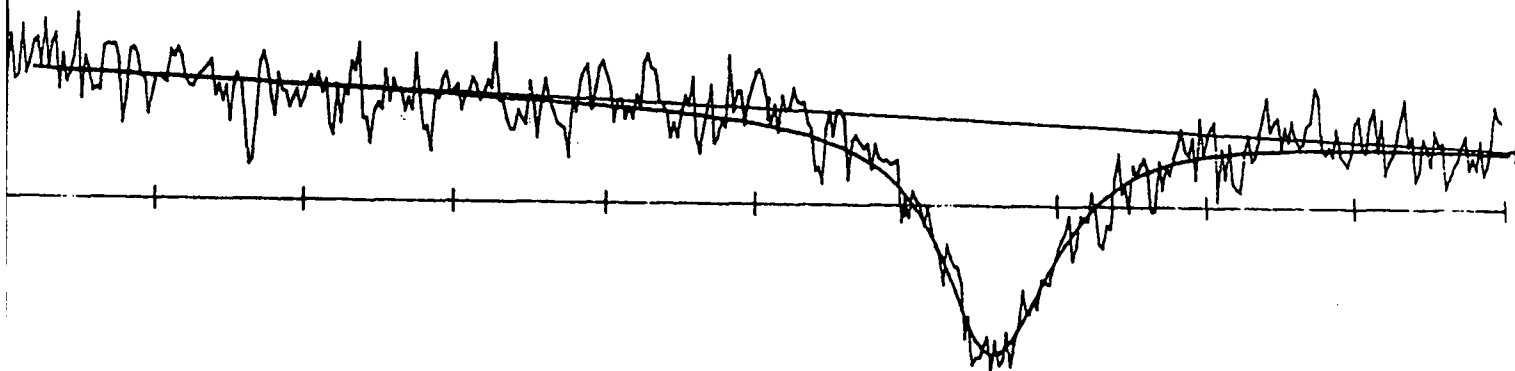
FIGURE 3.1.1



SF<sub>6</sub> P33 F<sub>2</sub><sup>4</sup>

FREQUENCE DE MODULATION:90.100 kHz

FR. INIT=100055.00 kHz FR. FIN=100035.00 kHz  
MOYENNE APRES 5 BALAYAGES DE DUREE 16 SEC



DEMI-LARGEUR A MI-HAUTEUR:900 Hz

FREQ. --->  
BALAYAGE DE PAS .05 kHz SUR 20.00 kHz  
NOM: SF6 16:FEV:84 17:23:29

FIGURE 3.1.2

Spectre à ultra-haute résolution d'une composante de la transition P33 F<sub>2</sub><sup>4</sup> de SF<sub>6</sub> à une pression de 10<sup>-5</sup> Torr et une intensité laser de 1 μW dans la cuve. Cinq balayages de constante de temps individuelle 30 ms ont été additionnés. La courbe lisse est une lorentzienne de demi-largeur à mi-hauteur 900 Hz. Cette largeur n'est qu'à 260 Hz environ de la limitation imposée par le temps de vol des molécules à travers le faisceau.

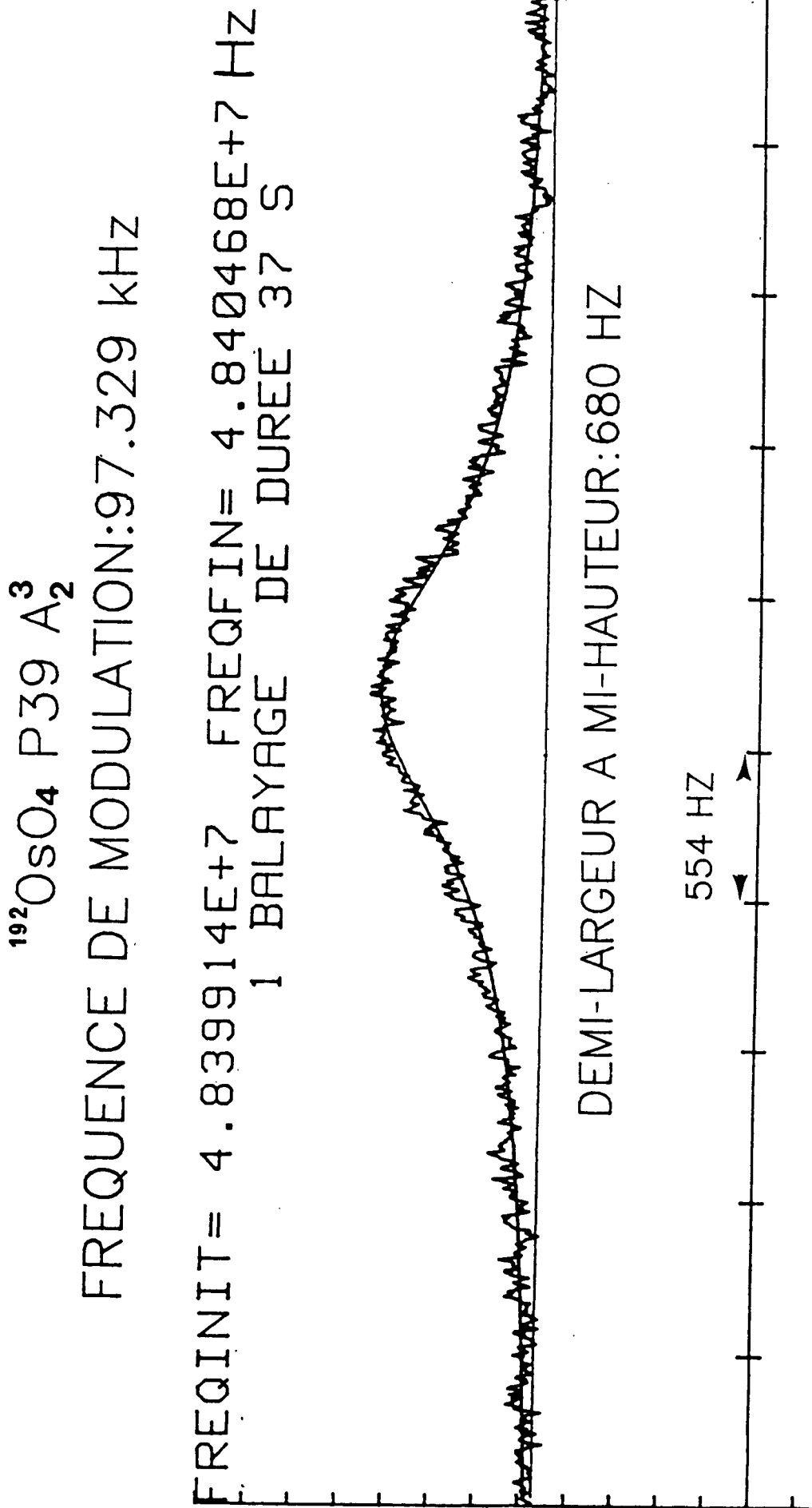
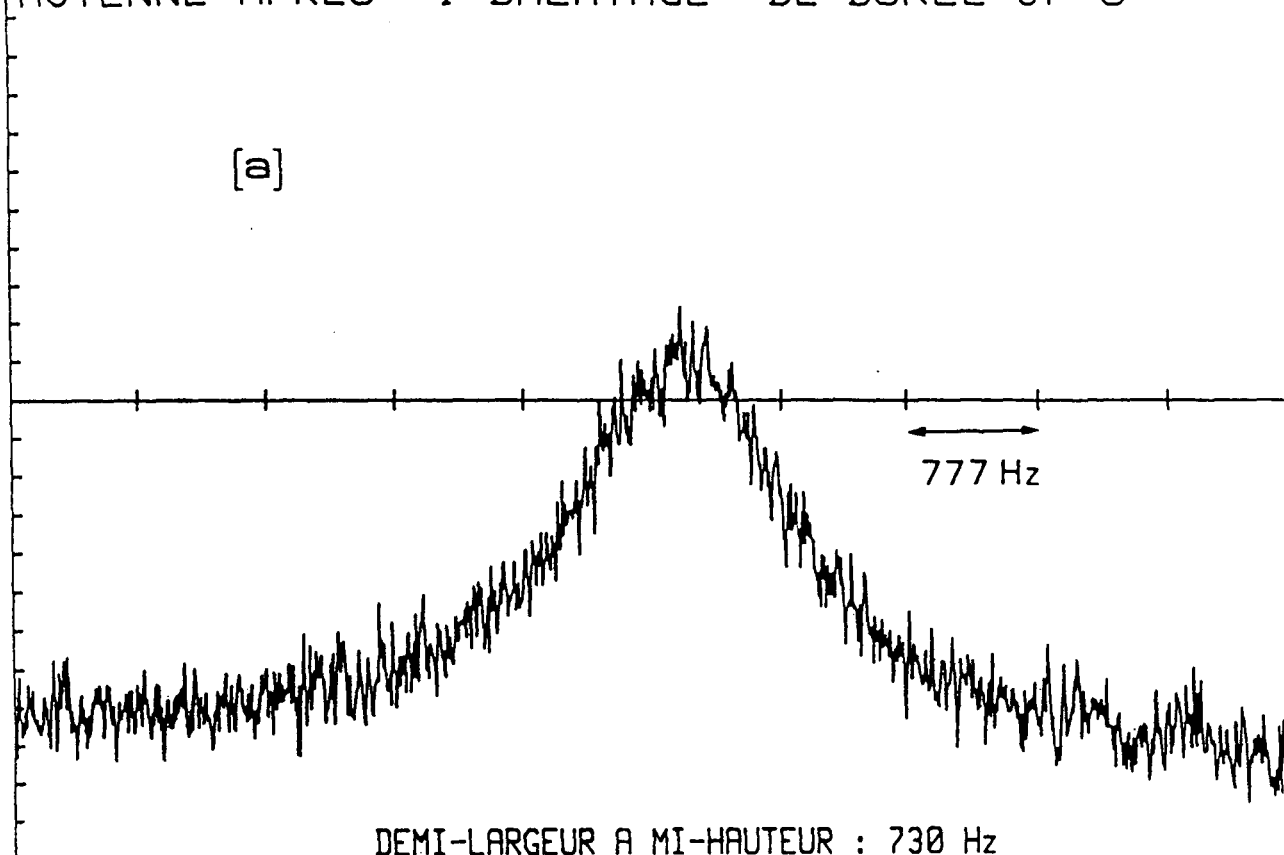


FIGURE 3.1.3

Spectre à ultra-haute résolution de la transition P 39 A<sub>2</sub><sup>3</sup> de la molécule  $^{192}\text{OsO}_4$  à une pression inférieure à  $10^{-5}$  Torr et une intensité laser d'environ 1,5  $\mu\text{W}$ . Constante de temps : 30 ms. La courbe lisse est une lorentzienne de demi-largeur à mi-hauteur : 680 Hz. C'est la résonance la plus étroite qui ait été observée avec l'appareillage actuel. Le laser de référence est verrouillé sur la raie R 66 A<sub>1</sub><sup>0</sup> F<sub>1</sub><sup>0</sup> F<sub>2</sub><sup>0</sup> A<sub>2</sub><sup>0</sup> de SF<sub>6</sub>.

FREQUENCE DE MODULATION: 97.329 kHz

FREQINIT= 4.830288E+7 FREQFIN= 4.831065E+7 Hz  
MOYENNE APRES 1 BALAYAGE DE DUREE 37 S



FREQINIT= 4.823416E+7 FREQFIN= 4.848294E+7  
MOYENNE APRES 1 BALAYAGE DE DUREE 37 S

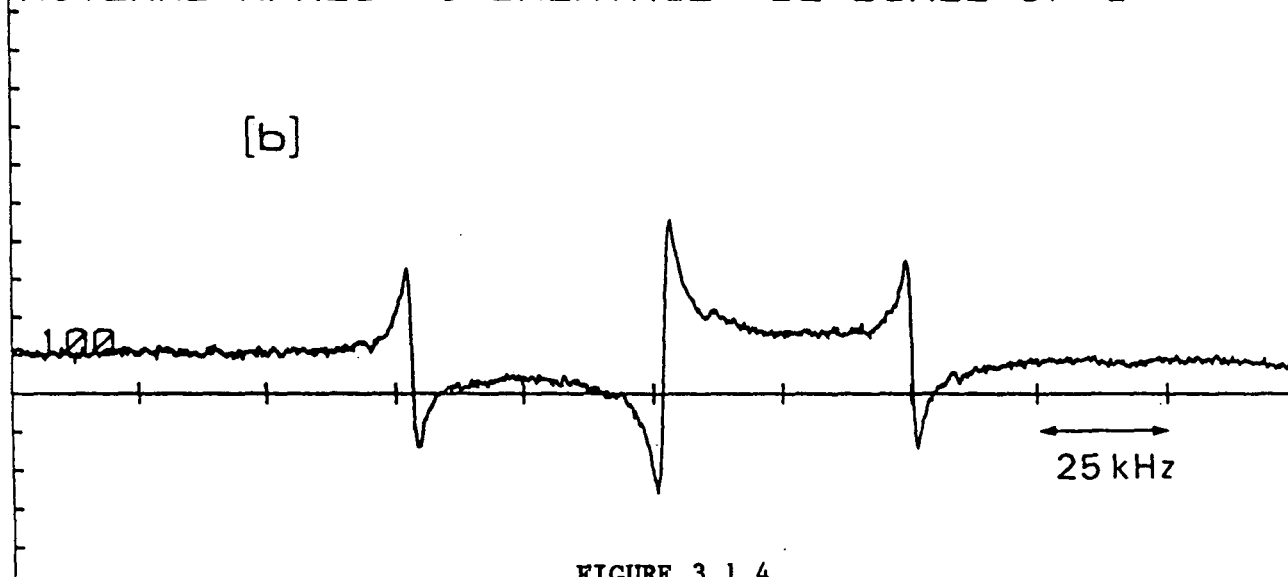


FIGURE 3.1.4

(a) Une des composantes du signal en phase.

(b) Signal en quadrature.

Ces signaux sont obtenus par détection hétérodyne à haute fréquence (97,382 kHz) pour la raie  $\text{P}(39)\text{A}_2^3$  de  $^{192}\text{OsO}_4$ , le laser de référence étant calé sur la raie  $\text{R}(66)$  de  $\text{SF}_6$  à 28 516 003 634 kHz. La pression de  $\text{OsO}_4$  est d'environ  $10^{-5}$  Torr et la constante de temps 30 ms. L'intensité laser est de l'ordre de 2  $\mu\text{W}$ . La demi-largeur de la raie d'absorption est ici égale à environ 750 Hz.

FR.INIT= 61815.96 kHz FR.FIN= 61915.47 kHz  
MOYENNE APRES 10 BALAYAGES DE DUREE 37 SEC

$B_h = 0.0$  Gauss

$B_v = 0.0$  Gauss

FREQ. --->  
BALAYAGE SUR 99.51 kHz  
NOM : NH3

(a)

FR.INIT= 61815.85 kHz FR.FIN= 61915.31 kHz  
MOYENNE APRES 10 BALAYAGES DE DUREE 37 SEC

$B_h = .2$  Gauss

$B_v = .4$  Gauss

FREQ. --->  
BALAYAGE SUR 99.46 kHz  
NOM : NH3

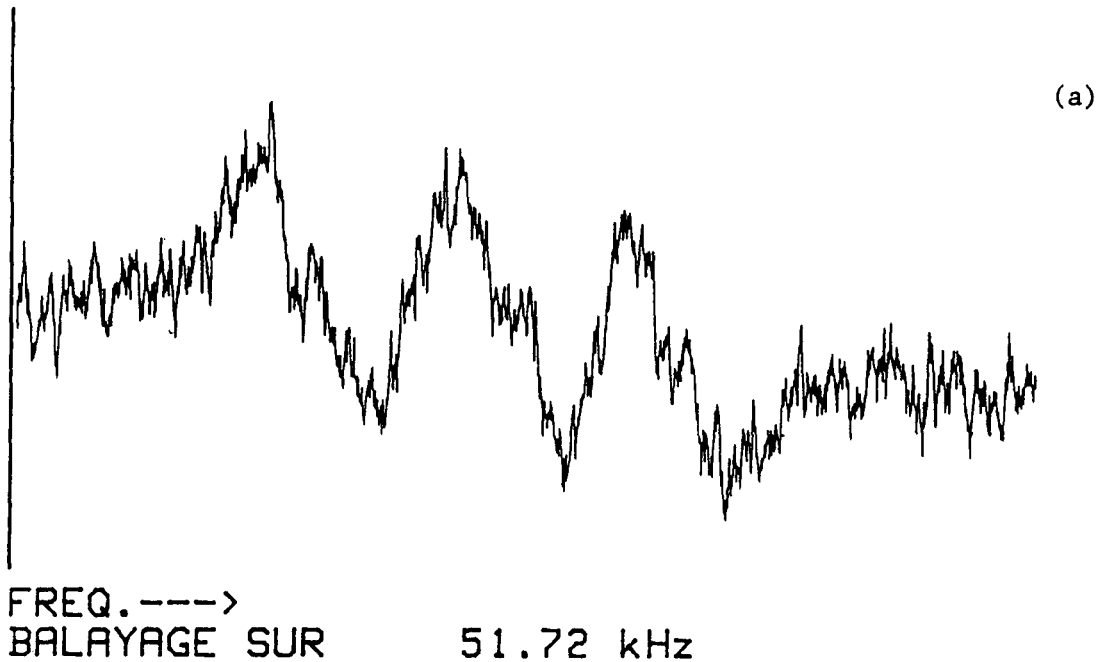
(b)

FIGURE 3.1.5 :

- (a) Spectre en dérivée première de la raie  $asR(2,0)$  de la bande  $\nu_2$  de  $^{15}\text{NH}_3$ . Fréquence de modulation : 750 Hz. Pression :  $1,5 \times 10^{-5}$  Torr. Intensité laser : 3  $\mu\text{W}$ . Constante de temps : 30 ms. Dix balayages de durée 37 secondes ont été additionnés. Le champ magnétique dans la cellule d'absorption est réduit en dessous du dixième de la valeur du champ magnétique terrestre. La largeur de raie (2,1 kHz HWHM) est essentiellement limitée par le temps de vol des molécules à travers le faisceau de diamètre  $2w = 8$  cm. Les élargissements par pression, par saturation, et par modulation sont inférieurs à 500 Hz.
- (b) Mêmes conditions que (a), mais le champ magnétique terrestre n'est pas compensé. Noter l'élargissement des résonances, plus marqué sur la droite du spectre.

Il est remarquable d'observer une largeur de raie (2kHz) aussi proche de la limitation imposée par le temps de vol des molécules à travers le faisceau (1,8 kHz), alors que les deux composantes de recul sont distantes de 216 Hz. C'est là une manifestation de l'affinement des raies de saturation dû à la contribution anormalement élevée des molécules de vitesse lente [40].

FR.INIT= 43181.05 kHz FR.FIN= 43232.77 kHz



FR.INIT= 76586.90 kHz FR.FIN= 76638.60 kHz

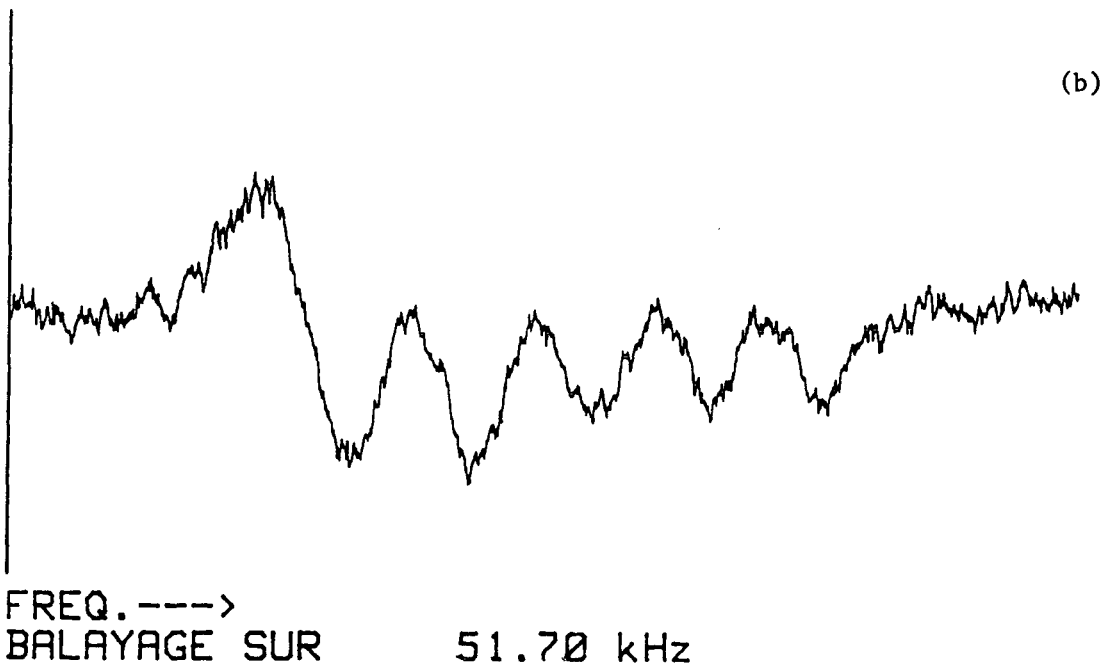


FIGURE 3.1.6

- (a) Structure hyperfine magnétique de la transition  $R(15)F_1^2$  dans la bande  $\nu_4$  [172] du silane  $^{29}\text{SiH}_4$  à 28 359 823 718 kHz. La demi-largeur à mi-hauteur des résonances est d'environ 2 kHz. Le laser de référence est verrouillé sur la résonance  $P(33)A_2^1$  de  $\text{SF}_6$ .
- (b) Structure hyperfine magnétique de la transition  $R(15)A_1$  dans la bande  $\nu_4$  [172] du silane  $^{30}\text{SiH}_4$  à 28 306 329 240 kHz. La demi-largeur à mi-hauteur des résonances est d'environ 2,2 kHz. Le laser de référence est verrouillé sur la raie  $P(59)A_2^3$  de  $\text{SF}_6$ .

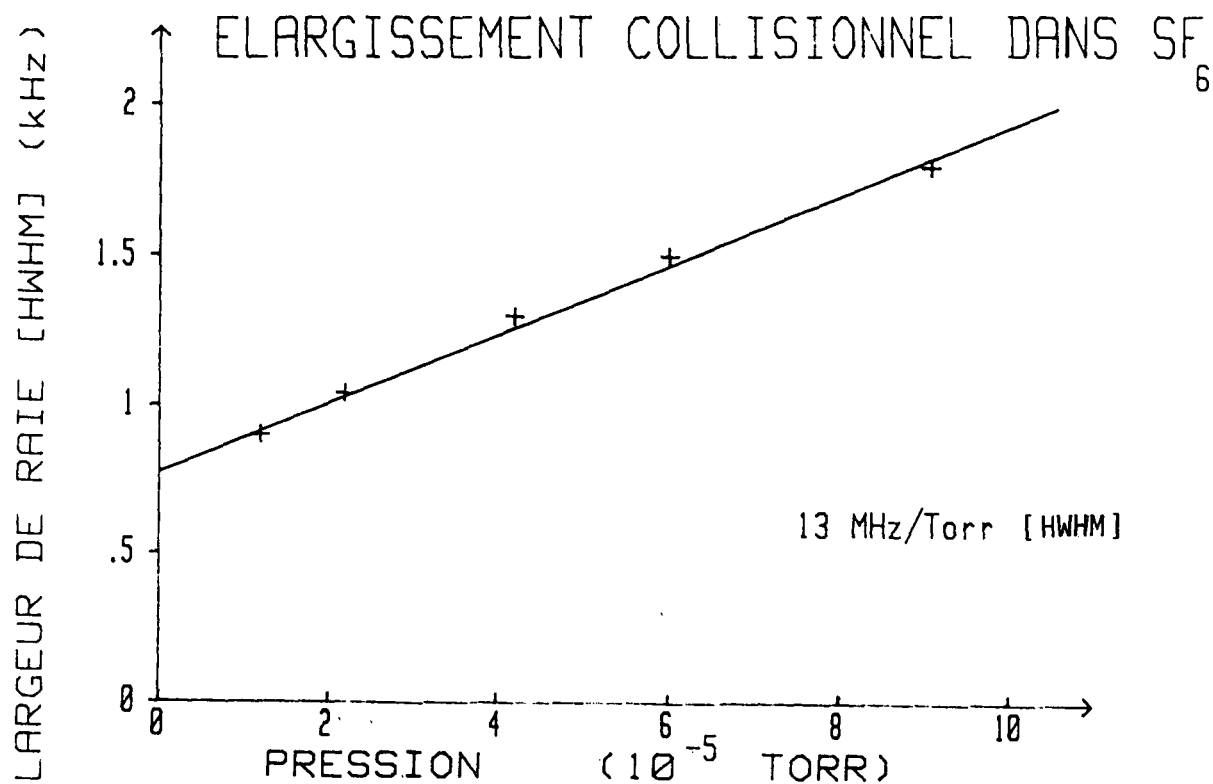


FIGURE 3.1.7

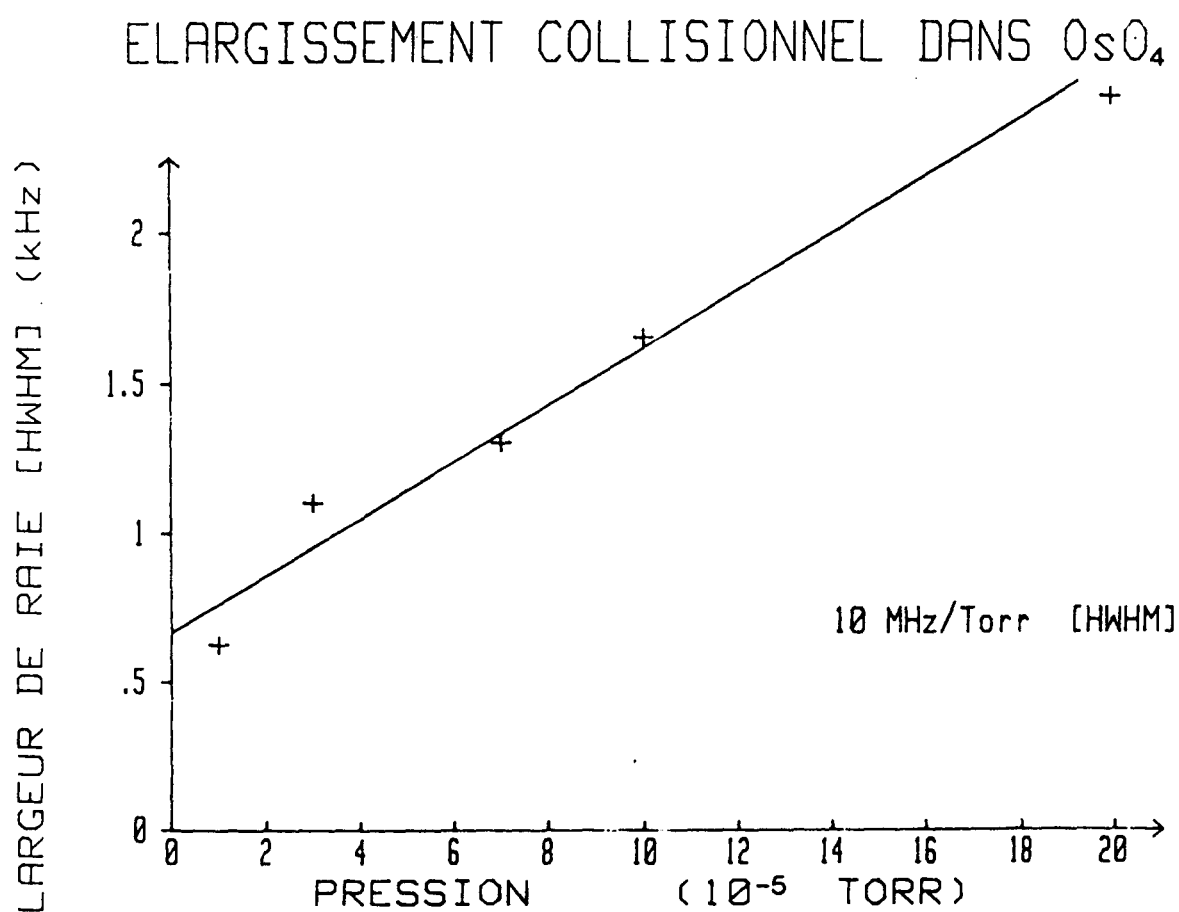


FIGURE 3.1.8

## 3.2 EFFET ZEEMAN DÛ AU CHAMP MAGNÉTIQUE TERRESTRE

### 3.2.1 LE SPECTRE ZEEMAN

Le pouvoir de résolution du spectromètre de saturation qui nous a permis d'observer des largeurs de raies inférieures au kHz (HWHM), nous a conduit à réaliser une compensation du champ magnétique terrestre afin d'éliminer sur certains spectres l'élargissement dû à l'effet Zeeman. La compensation du champ terrestre a été décrite en détail au paragraphe 2.6.5.

L'étude qui va suivre est restreinte aux hypothèses suivantes :

- Les molécules seront toujours considérées dans leur état électronique fondamental ( $^1\Sigma$ ).

- La présence de la structure hyperfine nous conduira à prendre comme hypothèse de calcul le cas d'un champ magnétique faible. (Champ terrestre). Dans le cas où l'énergie d'interaction avec le champ magnétique n'est pas négligeable devant les énergies hyperfines,  $F$  n'est plus un bon nombre quantique et nous renvoyons le lecteur à l'étude très générale de F. MICHELOT, B. BOBIN et J. MORET-BAILLY [135] pour les toupies sphériques. Dans le cas où le champ magnétique ( $H$ ) est trop faible pour détruire le couplage entre le moment rotationnel  $J$  et le moment de spin  $I$ , la molécule peut être considérée comme ayant deux moments magnétiques, l'un  $\mu_J$  orienté selon  $J$ , et l'autre  $\mu_I$  orienté selon  $I$  [114, 118].

L'énergie d'interaction est alors la suivante :

$$\Delta W = - \mu_F \cdot H \quad (3.2)$$

avec :

$$\mu_F = \mu_J + \mu_I$$

Nous utiliserons alors le modèle vectoriel de l'approche semi-classique pour donner l'expression de l'énergie en fonction des bons nombres quantiques  $F$ ,  $M_F$  ; où  $M_F$  représente la projection du moment angulaire total  $F$  sur le champ terrestre  $H$ , orienté selon  $Oz$ , que nous choisirons comme axe de quantification, soit :

$$\Delta W = - \mu_z H \quad (3.3)$$

et :

$$\begin{aligned}
 \mu_z &= \frac{F_z}{|\vec{F}|} [ |\vec{J}| \mu_J \cos(\vec{J}, \vec{F}) + |\vec{I}| \mu_I \cos(\vec{I}, \vec{F}) ] \\
 &= \frac{F_z}{F^2} (\mu_J \vec{J} \cdot \vec{F} + \mu_I \vec{I} \cdot \vec{F}) \\
 &= \frac{F_z}{F^2} \left[ \mu_J \frac{J^2 + F^2 - I^2}{2} + \mu_I \frac{I^2 + F^2 - J^2}{2} \right] \quad (3.4)
 \end{aligned}$$

L'énergie propre  $\Delta W = - \langle \mu_z \rangle H$  est alors donnée par l'expression suivante :

$$\Delta W = - \langle \mu_z \rangle H$$

$$= - \langle (JI) F M_F | \mu_z H | (JI) F M_F \rangle$$

$$= - M_F H \left[ \mu_J \frac{F(F+1) + J(J+1) - I(I+1)}{2F(F+1)} + \mu_I \frac{F(F+1) + I(I+1) - J(J+1)}{2F(F+1)} \right] \quad (3.5)$$

$$= - \frac{M_F}{2} \mu_n H \left[ (g_I + g_J) + (g_I - g_J) \frac{I(I+1) - J(J+1)}{F(F+1)} \right] \quad (3.6)$$

$$= - M_F \mu_n H g_F \quad (3.7)$$

où  $\mu_n$  représente le magnéton nucléaire.

$$\mu_I = g_I \mu_n, \quad \mu_J = g_J \mu_n \quad (3.8)$$

et

$$2g_F = (g_I + g_J) + (g_I - g_J) \frac{I(I+1) - J(J+1)}{F(F+1)} \quad (3.9)$$

Le déplacement en fréquence du niveau  $(I, J, F, M_F)$  s'écrit alors :

$$\Delta \nu(I, J, F, M_F) = - \alpha (2g_F) M_F \quad (3.10)$$



où  $\alpha = \mu_n \frac{H}{2h}$  ne dépend que de H.

Voyons pour fixer les idées, quelques ordres de grandeur des déplacements Zeeman dans le cas de la molécule  $SF_6$  :

$$\mu_n = 5,05 \cdot 10^{-27} \text{ J.T}^{-1}$$

$$h = 6,62 \cdot 10^{-34} \text{ J.S}$$

$$g_I = 5,255$$

$$g_J = 0,037$$

Il vient  $\alpha = 381 \cdot H \text{ (Hz)}$ . (3.11)

Si nous prenons pour valeur du champ terrestre  $H = 0,4 \text{ Gauss}$ , alors  $\alpha = 153 \text{ Hz}$ .

Nous nous intéresserons plus particulièrement aux valeurs  $J = 4$  et  $J = 28$  qui correspondent aux transitions  $P(4)$  et  $R(28)$  observées à la plus haute résolution avec les valeurs de  $J$  les plus faibles. A titre d'exemple nous choisirons  $I = 2$ . Soit :

$$2g_4 = 1,64$$

$$2g_{28} = 0,11$$

Si  $\Delta\nu_m^F$  représente le déplacement maximum obtenu pour  $|M_F| = F$ , alors :

$$\Delta\nu_m^4 = 1,0 \text{ kHz}$$

$$\Delta\nu_m^{28} = 0,5 \text{ kHz}$$

En fait, dans les expériences de spectroscopie nous n'avons pas accès directement aux niveaux d'énergie, mais aux transitions entre différents niveaux. Le calcul des déplacements des transitions fait alors intervenir l'état de polarisation du faisceau laser par rapport au champ magnétique terrestre. La configuration Nord-Sud de la grande cuve d'absorption, associée à la propagation de même direction du faisceau laser de polarisation circulaire conduit à considérer à la fois les transitions  $\Delta M = 0$  (composante

verticale de H) et  $\Delta M = \pm 1$  (composantes verticale-et horizontale de H).

Par la suite, nous désignerons respectivement par  $(J, F, M)$ ,  $(J', F', M')$  les nombres quantiques de l'état fondamental et de l'état excité. Les règles de sélection  $\Delta F = \Delta J = -1, 0, 1$  donnent les trois bandes habituelles P, Q, R. Nous noterons enfin  $F_{\min}$ ,  $F_{\max}$  les bornes de variation de M pour la transition considérée.

	$F_{\min}$	$F_{\max}$
$\Delta M = 0$	$-\text{Inf}(F, F + \Delta F)$	$\text{Inf}(F, F + \Delta F)$
$\Delta M = + 1$	$-F$	$F + \Delta F - 1$
$\Delta M = - 1$	$-(F + \Delta F - 1)$	$F$

Nous noterons  $\Delta E^q(I, J, F, \Delta F, M)$ , ( $q = 0, \pm 1$ ) le déplacement de la transition :

$$\left\{ \begin{array}{l} \Delta M = q \\ | I, J, F \rangle \longrightarrow | I, J + \Delta F, F + \Delta F \rangle \end{array} \right.$$

- Cas des transitions  $\Delta M = 0$

$$\Delta E^0(I, J, F, \Delta F, M) = \alpha M(2g_F - 2g_{F + \Delta F}) \quad (3.12)$$

avec :

$$2g_F = (g_I + g_J) + (g_I - g_J) \left[ \frac{I(I+1) - J(J+1)}{F(F+1)} \right] \quad (3.13)$$

et :

$$2g_{F + \Delta F} = (g_I + g_J) + (g_I - g_J) \left[ \frac{I(I+1) - (J + \Delta F)(J + \Delta F + 1)}{(F + \Delta F)(F + \Delta F + 1)} \right] \quad (3.14)$$

soit finalement :

$$\Delta E^0(I, J, \Delta F, M) = \alpha M (g_I - g_J) \left[ \frac{I(I+1) - J(J+1)}{F(F+1)} - \frac{I(I+1) - (J + \Delta F)(J + \Delta F + 1)}{(F + \Delta F)(F + \Delta F + 1)} \right] \quad (3.15)$$

- Cas des transitions  $\Delta M = +1$

$$\begin{aligned} \Delta E^{+1}(I, J, F, \Delta F, M) &= -\alpha(M+1)2g_{F+\Delta F} + \alpha M 2g_F \\ &= -\alpha 2g_{F+\Delta F} + \alpha M(2g_F - 2g_{F+\Delta F}) \\ &= \Delta E^0(I, J, F, \Delta F, M) - \alpha 2g_{F+\Delta F} \end{aligned} \quad (3.16)$$

- Cas des transitions  $\Delta M = -1$

$$\begin{aligned} \Delta E^{-1}(I, J, F, \Delta F, M) &= -\alpha(M-1)2g_{F+\Delta F} + \alpha M 2g_F \\ &= \Delta E^0(I, J, F, \Delta F, M) + \alpha 2g_{F+\Delta F} \end{aligned}$$

soit :

$$\Delta E^{-1}(I, J, F, \Delta F, M) = -\Delta E^{+1}(I, J, F, \Delta F, -M) . \quad (3.17)$$

Et, compte tenu des bornes de variation de M il est clair que la structure Zeeman  $\Delta M = -1$  est identique à la structure  $\Delta M = +1$ .

Les expressions (3.12), (3.16), montrent très clairement que l'étalement en fréquence des composantes Zeeman sera une fonction assez complexe des cinq variables J, I, F,  $\Delta F$ , M.

L'appendice D fournira au lecteur les valeurs précises des déplacements Zeeman pour toutes les composantes des transitions P4, R28, Q55 et R94 de SF<sub>6</sub>, dans l'hypothèse d'un champ magnétique faible.

Nous avons résumé ci-dessous, pour chacune des valeurs de I, la valeur maximale de l'étalement Zeeman, par rapport à (F, M), pour un champ magnétique de 0,4 Gauss.

TABLEAU 3.2

VALEUR MAXIMALE DES DEPLACEMENTS ZEEMAN POUR UN CHAMP  
MAGNETIQUE DE 0,4 GAUSS POUR LA MOLECULE  $\text{SF}_6$

Max $\Delta E^Q(I, J, F, \Delta F, M)$ (F, M) (Hz)			
	I	$\Delta M = 0$	$\Delta M = \pm 1$
P(4)	0	0	11
	1	318	651
	2	530	1579
R(28)	0	0	11
	1	53	117
	2	110	216
	3	170	335
R(94)	0,1,2,3	$\leq 50$	$\leq 100$

Cette étude nous permet donc d'affirmer que pour les transitions de vibration-rotation de valeurs de  $J \geq 28$  l'effet Zeeman reste très faible, au plus 300 Hertz. En réalité cela se traduira même par un effet très inférieur à 300 Hz au niveau des spectres expérimentaux, car, comme le calcul des intensités hyperfines le montrera, ce sont les composantes les moins déplacées qui seront les plus intenses. Dans le cas de la transition P(4), les conditions expérimentales ne permettent pas d'obtenir une résolution et un rapport signal sur bruit suffisant pour pouvoir mettre en évidence l'élargissement Zeeman. En effet, les transitions de J faible de  $\text{SF}_6$  sont très peu peuplées, ce qui conduit à augmenter la pression et par conséquent diminuer la résolution.

Par contre, l'effet Zeeman dû au champ terrestre se manifeste de façon spectaculaire sur la transition as R(2,0) de la bande  $\nu_2$  de l'ammoniac  $^{15}\text{NH}_3$ . La figure 3.2.1 présente cette transition avec ou sans compensation du champ magnétique terrestre.

### 3.2.2. CALCUL DES INTENSITES RELATIVES DES COMPOSANTES ZEEMAN

Nous ne nous intéressons qu'aux intensités relatives des différentes composantes Zeeman qui présentent la même forme de raie et les mêmes constantes de relaxation. Ecrivons la forme générale de l'élément matriciel:

$$\begin{aligned} & \langle b F_b M_b J_b I_b | \mu_q | a F_a M_a J_a I_a \rangle = \\ & (-1)^{F_b - M_b} \begin{pmatrix} F_b & 1 & F_a \\ -M_b & q & M_a \end{pmatrix} \langle b F_b J_b I_b || \mu || a F_a J_a I_a \rangle \end{aligned} \quad (3.18)$$

avec :

$$\begin{aligned} & \langle b F_b J_b I_b || \mu || a F_a J_a I_a \rangle = \\ & (-1)^{F_a + J_b + I_b + 1} \delta_{I_a I_b} [(2F_b + 1)(2F_a + 1)]^{1/2} \\ & \times \begin{pmatrix} J_b & 1 & J_a \\ F_a & I_a & F_b \end{pmatrix} \langle b J_b || \mu || a J_a \rangle \end{aligned} \quad (3.19)$$

- où
- a et b représentent respectivement les niveaux inférieur et supérieur,
  - q le type de polarisation utilisée ( $q = 0, \pm 1$ ),
  - I, J, F ont les définitions usuelles ( $F = J + I$ ).

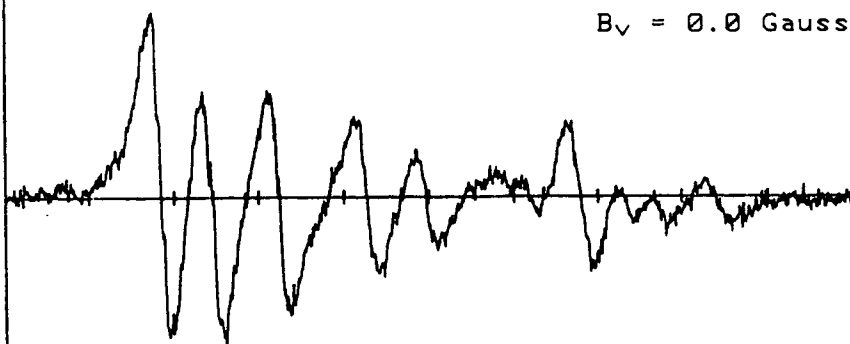
FIGURE 3.2.1

- (a) Spectre en dérivée première de la raie  $s R(2,0)$  de la bande  $\nu_2$  de  $^{15}\text{NH}_3$ . Fréquence de modulation : 750 Hz. Pression :  $1,5 \times 10^{-5}$  Torr. Intensité laser : 3  $\mu\text{W}$ . Constante de temps : 30 ms. Dix balayages de durée 37 secondes ont été additionnés. Le champ magnétique dans la cellule d'absorption est réduit en dessous du dixième de la valeur du champ magnétique terrestre. La largeur de raie (2,1 kHz HWHM) est essentiellement limitée par le temps de vol des molécules à travers le faisceau de diamètre  $2 w_0 = 8$  cm. Les élargissements par pression, par modulation et par saturation, sont inférieurs à 500 Hz.
- (b) Mêmes conditions que (a), mais le champ magnétique terrestre n'est pas compensé. Noter l'élargissement des résonances, plus marqué sur la droite du spectre.
- (c) Mêmes conditions que (a). Le champ magnétique dans la cellule est vertical et vaut trois fois la composante verticale du champ terrestre.

FR.INIT= 61815.96 kHz FR.FIN= 61915.47 kHz  
MOYENNE APRES 10 BALAYAGES DE DUREE 37 SEC

$B_h = 0.0$  Gauss

$B_v = 0.0$  Gauss



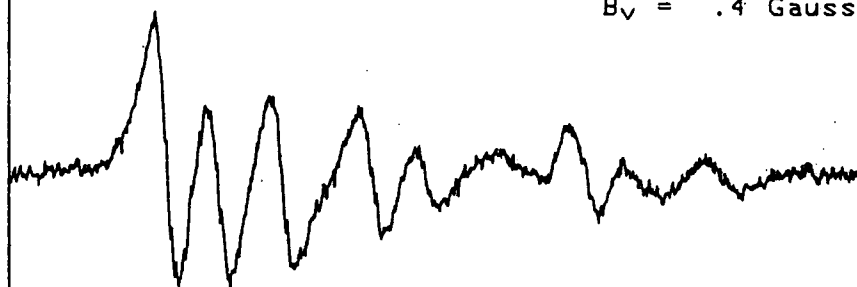
(a)

FREQ.---->  
BALAYAGE SUR 99.51 kHz  
NOM : NH3

FR.INIT= 61815.85 kHz FR.FIN= 61915.31 kHz  
MOYENNE APRES 10 BALAYAGES DE DUREE 37 SEC

$B_h = .2$  Gauss

$B_v = .4$  Gauss



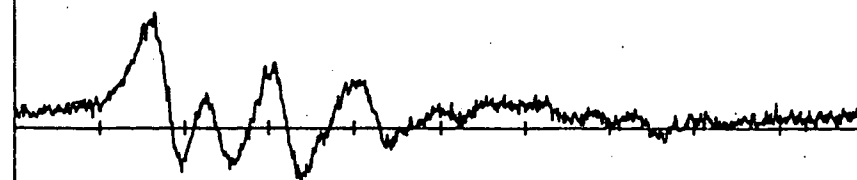
(b)

FREQ.---->  
BALAYAGE SUR 99.46 kHz  
NOM : NH3

FR.INIT= 61815.55 kHz FR.FIN= 61915.08 kHz  
MOYENNE APRES 10 BALAYAGES DE DUREE 37 SEC

$B_h = 0.0$  Gauss

$B_v = 1.2$  Gauss



(c)

FREQ.---->  
BALAYAGE SUR 99.53 kHz  
NOM : NH3

FIGURE 3.2.1

Calculons tout d'abord les intensités relatives des différentes composantes  $M_F$  d'une transition hyperfine donnée. La formule (3.18) indique que ces intensités  $I_M^Q$  s'obtiennent très simplement à partir de l'expression des symboles  $3j$ . Cependant, nous nous heurtons ici au problème de la réponse non linéaire des molécules en fonction de l'intensité du laser. En effet, à la limite des champs laser très faibles où la théorie au quatrième ordre de perturbation est valable, ces intensités sont proportionnelles à  $\left( \begin{smallmatrix} F_b & 1 & F_a \\ -M_b & q & M_a \end{smallmatrix} \right)^4$ .

Mais dans la plupart des conditions expérimentales que nous avons rencontrées à très haute résolution pour  $SF_6$  ou  $OsO_4$ , nous n'étions pas en champ laser très faible, mais plutôt au voisinage d'une impulsion  $\pi/2$  ou légèrement en dessous (0,5 à 1  $\mu W$  pour  $SF_6$  en cuve, 10 à 30  $\mu W$  pour  $SF_6$  en jet supersonique). Se reporter à la discussion du paragraphe 3.3. La figure 4.4.10 indique alors qu'il est raisonnable de supposer, dans ces conditions que le signal de saturation croît linéairement avec la puissance, et donc :

$$I_M^Q \propto \left( \begin{smallmatrix} F_b & 1 & F_a \\ -M_b & q & M_a \end{smallmatrix} \right)^2 \quad (3.20)$$

Les expressions  $I_M^Q$  sont données dans le tableau 3.3, pour les trois branches P, Q et R. Nous sommes maintenant en mesure de tirer des conclusions quant à la structure Zeeman des composantes hyperfines des transitions.

#### 1 - Cas $\Delta M = 0$

Dans le cas des transitions P et R les composantes les plus intenses correspondent aux valeurs de M faibles qui sont aussi les composantes les moins décalées. Les rapports d'intensités entre composantes extrêmes varient comme  $\frac{F^2}{2F+1}$ .

Dans le cas particulier de la raie P4 de  $SF_6$  ce rapport vaut 2 et par conséquent il est légitime de considérer que toutes les composantes



Zeeman contribuent au signal. Par contre, pour les raies de J élevé ( $J \geq 28$ ), seules les composantes de  $|M|$  faibles vont contribuer de manière appréciable au signal, ce qui aura pour conséquence de réduire l'élargissement, déjà faible, dû à l'effet Zeeman, et finalement de pouvoir le négliger totalement.

## 2 - Cas $\Delta M = +1$

Un examen approfondi de l'élargissement Zeeman, formules (3.12)(3.16), montre que les composantes les plus déplacées ( $M \approx F_{\min}$  pour la branche R et  $M \approx F_{\max}$  pour la branche P) correspondent aux intensités les plus faibles (voir le Tableau 3.3), le rapport variant cette fois comme  $F(2F-1)$ .

3 - Pour les raies de la branche Q ( $\Delta F = 0$ ), l'élargissement Zeeman reste toujours très faible (inférieur à 100 Hz) et peut être négligé.

A titre d'exemple, le lecteur trouvera dans l'Appendice D, le spectre Zeeman de chacune des composantes hyperfines pour les transitions P4, R28, Q55 et R94.

Le calcul de l'intensité des composantes Zeeman ainsi que le tableau 3.2 et l'Appendice D, qui donnent leur étalement en fréquence, conduisent aux deux conclusions suivantes :

- Au niveau de résolution actuel du spectromètre ( $\sim 1$  kHz) la structure Zeeman des raies de saturation de  $\text{SF}_6$  pourra être négligée pour les valeurs de J élevées.

- La compensation du champ magnétique terrestre ( $B \lesssim B_{\text{Terrestre}}/10$ ) sera amplement suffisante pour ramener l'élargissement des raies à un niveau totalement négligeable ( $\leq 50$  Hz).

Il est alors commode d'introduire la valeur quadratique moyenne des intensités des composantes Zeeman :

$$\langle I_M^q \rangle = \frac{1}{(F_{\max} - F_{\min} + 1)} \sum_{M=F_{\min}}^{F_{\max}} I_M^q = \frac{1}{3} \frac{1}{(F_{\max} - F_{\min} + 1)} \quad (3.21)$$

où nous avons utilisé la règle de sommation des symboles 3-j :

$$\sum_{M_a M_b} \begin{pmatrix} F_b & 1 & F_a \\ M_b & q & M_a \end{pmatrix}^2 = \frac{1}{3} \quad (3.22)$$

TABLEAU 3.3

F = Sup(F <sub>a</sub> , F <sub>b</sub> )		P		Q		R	
$\Delta M = 0$	$I_M^0$	$\frac{2(F^2 - M^2)}{(2F+1)2F(2F-1)}$		$\frac{M^2}{F(F+1)(2F+1)}$		$\frac{2(F^2 - M^2)}{(2F+1)2F(2F-1)}$	
	Max   Min	$\frac{F}{(2F+1)(2F-1)}$	$\frac{1}{F(2F+1)}$	$\frac{F}{(F+1)(2F+1)}$	$\frac{1}{F(F+1)(2F+1)}$	$\frac{F}{(2F+1)(2F-1)}$	$\frac{1}{F(2F+1)}$
	nombre de transitions	2F-1		2F+1		2F-1	
	Max/Min	$\frac{F^2}{2F-1}$		$F^2$		$\frac{F^2}{2F-1}$	
	$\frac{\langle I_M^0 \rangle}{\text{Max}}$	$\frac{1}{3} \frac{2F+1}{F}$		$\frac{1}{3} \frac{F+1}{F}$		$\frac{1}{3} \frac{2F+1}{F}$	
$\Delta M = +1$	$I_M^1$	$\frac{(F-M)(F-M-1)}{(2F+1)(2F)(2F-1)}$		$\frac{(F-M)(F+M+1)}{(F+1)2F(2F+1)}$		$\frac{(F+M)(F+M+1)}{(2F+1)2F(2F-1)}$	
	Max   Min	$\frac{1}{2F+1}$	$\frac{1}{F(2F+1)(2F-1)}$	$\frac{1}{2(2F+1)}$	$\frac{1}{(F+1)(2F+1)}$	$\frac{1}{2F+1}$	$\frac{1}{F(2F-1)(2F+1)}$
	nombre de transitions	2F-1		2F		2F-1	
	Max/Min	$F(2F-1)$		$\frac{F+1}{2}$		$F(2F-1)$	
	$\frac{\langle I_M^1 \rangle}{\text{Max}}$	$\frac{1}{3} \frac{2F+1}{2F-1}$		$\frac{1}{3} \frac{2F+1}{F}$		$\frac{1}{3} \frac{2F+1}{2F-1}$	

INTENSITES RELATIVES DES DIFFERENTES TRANSITIONS ZEEMAN D'UNE RAIE  
RO-VIBRATIONNELLE EN SPECTROSCOPIE DE SATURATION

Les valeurs données dans ce tableau supposent une dépendance linéaire du signal avec la puissance du laser. En champ laser faible cette dépendance est quadratique et les intensités  $I_M^0$  et  $I_M^1$  doivent être élevées au carré.

Nous avons également porté dans le Tableau 3.3 la valeur quadratique moyenne normalisée :  $\langle I_M^0 \rangle / \text{Max}$  pour chacun des cas considérés. Pour les valeurs de J élevées, cette moyenne a pour valeur limite 1/3 ou 2/3 selon les cas.

Le calcul des intensités pour les différentes valeurs de M met en évidence une dispersion importante des coefficients de Clebsch-Gordan.

Selon les transitions P, Q, R et l'état de polarisation  $\Delta M = 0, \pm 1$  de la lumière, le Tableau 3.3 montre que cette dispersion peut varier comme  $\frac{F}{2}$ ,  $F^2$ , ou  $2F^2$ . Ceci se traduira expérimentalement par une saturation différentielle de chacune des composantes Zeeman. Dans le cas des franges de Ramsey ceci sera un obstacle sérieux à la réalisation d'une impulsion  $\pi/2$  pour une transition hyperfine donnée. Le signal de franges est en effet très sensible à l'intensité du laser, comme cela est visible sur la figure 4.4.10.

Il y aura donc lieu de travailler sur une raie de J faible pour minimiser cet effet de dispersion des intensités de saturation.

### 3.3 CALCUL THÉORIQUE DE L'ORDRE DE GRANDEUR DU SIGNAL DE SATURATION OU DE FRANGES DE RAMSEY

#### 3.3.1 INTRODUCTION

Le signal observé sur le détecteur HgCdTe est la puissance absorbée par les molécules :

$$P = \hbar\omega \times \Phi_{\text{eff}} \quad (3.23)$$

soit un nombre de quanta d'énergie  $\hbar\omega$  échangés entre les molécules et le faisceau laser, par unité de temps.  $\Phi_{\text{eff}}$  est un flux effectif en molécules/s qui dépend de l'expérience (cuve ou jet) et de la détection (détection de l'absorption du faisceau laser lui-même ou détection bolométrique).

Le flux  $\Phi_{\text{eff}}$  s'écrit [43] :

$$\Phi_{\text{eff}} = \eta [n_a^{(0)} V] \frac{\delta v_z}{\Delta v_z} \frac{1}{T_1} \quad (3.24)$$

où :

- $\eta$  est une efficacité d'excitation de chaque molécule (toujours inférieure ou égale à 1). En champ faible,  $\eta$  est proportionnel aux paramètres

de saturation  $S^+$  et  $S^-$  des champs + ou - dits champs saturant ou sonde. Ces paramètres sont fonction des pulsations de Rabi  $\Omega^\pm = \frac{\mu E^\pm}{2\hbar}$ . Il faut alors distinguer deux régimes, définis par le temps caractéristique de traversée du faisceau gaussien par les molécules :

$$S^\pm = \frac{2}{\gamma_{ba}} \left( \frac{1}{\gamma_a} + \frac{1}{\gamma_b} \right) (\Omega^\pm)^2 \quad (3.25)$$

en régime collisionnel, et :

$$S^\pm = \pi (T_{tr} \Omega^\pm)^2 = \pi (\Omega^\pm \frac{w_0}{u})^2 \quad (3.26)$$

en régime de vol libre.

$$T_{tr} = \frac{w_0}{u} .$$

•  $n_a^{(0)} V$  représente le nombre total de molécules à l'équilibre thermodynamique dans le niveau de départ a, à l'intérieur du volume d'interaction  $V = \pi w_0^2 L$  où  $L$  est la longueur de la cellule d'absorption (ou l'épaisseur optique du jet).

•  $\frac{\delta v_z}{\Delta v_z}$  est la fraction des molécules qui est effectivement utilisée dans l'espace des vitesses  $v_z$  ( $z$  est l'axe optique des faisceaux lasers)

En absorption saturée  $\frac{\delta v_z}{\Delta v_z} \sim \frac{\text{Largeur de la raie de saturation}}{\text{Largeur Doppler}} = \frac{\gamma}{ku}$

où  $\gamma$  est limitée soit par les durées de vie radiatives, soit par les collisions, soit par le temps de transit (à très haute résolution). En particulier  $\gamma/2\pi$  vaut  $\frac{1}{8} \frac{u}{w_0}$  en régime de vol libre.

•  $T_1$  est le temps de relaxation de l'énergie; c'est le temps moyen que mettent les molécules à transférer leur énergie d'excitation au thermostat : en régime collisionnel  $T_1 = \frac{1}{2} \left( \frac{1}{\gamma_a} + \frac{1}{\gamma_b} \right)$ ; en régime de vol libre  $T_1 \sim \frac{w_0}{u}$ .

L'examen de la formule (3.24) montre que l'augmentation de la résolution passe par une réduction de la pression dans la cellule d'absorption pour

passer du régime collisionnel au régime de vol libre. Il en résulte une diminution de  $n_a^{(0)}$  qui ne peut malheureusement pas être indéfiniment compensée par un accroissement de la longueur  $L$  de la cuve. Dès lors, en régime de vol libre :

$$\frac{\delta v_z}{\Delta v_z} \sim \frac{1}{kw_0} \quad \text{et} \quad T_1 = \frac{w_0}{u}$$

de sorte que :

$$\Phi_{\text{eff}} \propto \eta n_a^{(0)} u L/k \quad (3.27)$$

et :

$$P \sim \hbar \omega \eta n_a^{(0)} u L/k \quad (3.28)$$

On notera que le diamètre  $2w_0$  du faisceau n'apparaît pas dans cette formule. En pratique, cette quantité  $P$  qui représente la puissance absorbée est à comparer à la puissance  $P_{\pi/2}$  nécessaire pour saturer la transition, soit effectuer approximativement une impulsion  $\pi/2$  pour le vecteur de Bloch du système à deux niveaux correspondant. Le rapport de ces deux quantités ( $P/P_{\pi/2}$ ) est le contraste de la raie de saturation.

La puissance totale d'un faisceau gaussien s'écrit :

$$P = \frac{1}{2} c \epsilon_0 \iint E E^* dx dy \quad (3.29)$$

Cette quantité se calcule aisément au col (waist)  $w_0$  du faisceau, où :

$$E = E_0 \exp - \frac{(x^2 + y^2)}{w_0^2} e^{i(\omega t - kz)} + \text{c.c.}$$

$$P = \frac{1}{2} c \epsilon_0 E_0^2 \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} dx dy \exp - 2 \frac{(x^2 + y^2)}{w_0^2}$$

$$P = \frac{\pi}{4} c \epsilon_0 w_0^2 E_0^2 \quad (3.30)$$

Par définition, l'impulsion  $\pi/2$  pour le vecteur de Bloch correspond à :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \mu \frac{E^{\pi/2}}{\hbar} dt = \pi/2 \quad (3.31)$$

Calculons l'impulsion  $\pi/2$  pour les molécules traversant le faisceau en son centre. Par rotation des axes nous pouvons prendre  $v_y = 0$  et  $x = vt$ , car en spectroscopie de saturation  $v_z$  est très petit :

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^{+\infty} \mu \frac{E^{\pi/2}}{\hbar} dt &= \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\mu E_o^{\pi/2}}{\hbar} \exp\left(-\frac{x^2}{w_o^2}\right) \frac{dx}{v} \\ &= \frac{\mu}{\hbar} E_o^{\pi/2} \sqrt{\pi} \frac{w_o}{v} \\ &= \frac{\pi}{2} \end{aligned}$$

Finalement,

$$E_o^{\pi/2} = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \frac{v}{w_o} \frac{\hbar}{\mu} \quad (3.32)$$

Associant (3.30) et (3.32), et utilisant  $\alpha = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_o \hbar c}$  nous déduisons la puissance associée à une impulsion  $\pi/2$ :

$$P_{\pi/2} = \frac{\pi}{64} \frac{\hbar}{\alpha} \frac{v^2}{(\mu/e)^2} \quad (3.33)$$

Cette expression de  $P_{\pi/2}$  montre qu'en régime de vol libre, la puissance laser nécessaire pour réaliser une impulsion  $\pi/2$  ne dépend que du carré de la vitesse de traversée du faisceau et est inversement proportionnelle au carré du moment de transition  $\mu$ .

Dans le cas où le trajet de la molécule ne passe pas par le centre du faisceau laser il faut alors introduire la dépendance en  $y$  du champ laser soit :

$$P_{\pi/2} = \frac{\pi}{64} \frac{\hbar}{\alpha} \frac{v^2}{(\mu/e)^2} \times e^{-\frac{2y^2}{w_o^2}} \quad (3.34)$$

A cette dépendance en  $y$  il faut d'ailleurs ajouter une dépendance en  $v$  due à la distribution des vitesses à l'équilibre thermodynamique.

Désormais, il suffit de calculer  $\mu$  et  $n_a^{(0)}$  pour chiffrer la puissance absorbée et la puissance correspondant à une impulsion  $\pi/2$ .  $\mu$  et  $n_a^{(0)}$  dépendent de la transition considérée. Dans le cas de  $SF_6$ , nous détaillerons les calculs correspondants à la raie  $P(4)F_1$  observée à la fois en cuve à température ambiante et en jet supersonique, et à la raie  $R(28)A_2^0$ . Enfin, la puissance correspondant à une impulsion  $\pi/2$  pour les transitions as  $R(2,0)$  de  $NH_3$  et  $P(33)A_2$  de  $OsO_4$ , sera donnée à titre de comparaison.

### 3.3.2 CALCUL DU MOMENT DE TRANSITION

Nous considérons maintenant l'expression générale du moment de transition [110] :

$$\begin{aligned} \mu = & \langle b F_b M_b J_b I_b | \mu_q | a F_a M_a J_a I_a \rangle = (-1)^{F_b - M_b} \begin{pmatrix} F_b & 1 & F_a \\ -M_b & q & M_a \end{pmatrix} \\ & \times (-1)^{F_a + J_b + I_b + 1} \delta_{I_a I_b} \left[ (2F_b + 1)(2F_a + 1) \right]^{1/2} \\ & \times \begin{pmatrix} J_b & 1 & J_a \\ F_a & I_a & F_b \end{pmatrix} \langle b J_b || \mu || a J_a \rangle \end{aligned} \quad (3.35)$$

Le symbole 6-j peut s'exprimer très simplement en fonction de  $J, I, F$  [111]. Pour une transition  $\Delta J = \Delta F = -1$ , par exemple :

$$J = J_a = J_b + 1$$

$$F = F_a = F_b + 1$$

$$I = I_a = I_b$$

soit :

$$\begin{pmatrix} J-1 & 1 & J \\ F & I & F-1 \end{pmatrix} = (-1)^{I+J+F} \times \left[ \frac{(J+F+I)(J+F+I+1)(J+F-I)(J+F-I-1)}{(2J-1)(2J)(2J+1)(2F-1)(2F)(2F+1)} \right]^{1/2} \quad (3.36)$$

De la même manière pour les transitions  $\Delta F = 0$  et  $\Delta F = +1$ , nous pouvons développer les symboles 6-j [111].

D'autre part, dans le cas de la molécule  $\text{SF}_6$  l'élément de matrice réduit s'écrit [112, 136] :

$$\langle b J_b || \mu || a J_a \rangle = \mu_{01} \sqrt{2J_b+1} \quad (3.37)$$

avec :  $\mu_{01} = 0,42 \text{ Debye}$

A titre d'exemple, nous allons considérer successivement les transitions  $P(4)F_1$  et  $R(28)A_2$  de  $\text{SF}_6$ .

#### 1) Transition $P(4)F_1$

A la représentation irréductible de vibration-rotation  $F_1$  est associée une seule valeur de spin  $I=1$  ce qui fournit trois composantes hyperfines  $F = J-1, J, J+1$ , de moments respectifs :

$$|\mu_M|_q^{J+1} = 0,42 \sqrt{2J-1} \sqrt{\frac{2J+3}{2J+1}} \left| \begin{pmatrix} J & 1 & J+1 \\ -(M+q) & q & M \end{pmatrix} \right| \quad (3.38)$$

$$|\mu_M|_q^J = 0,42 \sqrt{2J-1} \sqrt{\frac{J^2-1}{J^2}} \left| \begin{pmatrix} J-1 & 1 & J \\ -M+q & q & M \end{pmatrix} \right| \quad (3.39)$$

$$|\mu_M|_q^{J-1} = 0,42 \sqrt{2J-1} \sqrt{\frac{2J-3}{2J-1}} \left| \begin{pmatrix} J-2 & 1 & J-1 \\ -(M+q) & q & M \end{pmatrix} \right| \quad (3.40)$$

En fait, comme nous l'avons vu au paragraphe précédent, la structure Zeeman n'est pas résolue et sous réserve d'une dépendance linéaire du signal de saturation avec l'intensité laser, nous pouvons considérer la valeur quadratique moyenne des moments de transition.



$$|\mu|^{J+1} = \frac{0,42}{\sqrt{3}} \sqrt{2J-1} \sqrt{\frac{2J+3}{2J+1}} \frac{1}{\sqrt{2J+1}} = \frac{0,42}{\sqrt{3}} \frac{\sqrt{(2J-1)(2J+3)}}{(2J+1)} \quad (3.41)$$

$$|\mu|_q^J = \frac{0,42}{\sqrt{3}} \sqrt{2J-1} \sqrt{\frac{J^2-1}{J^2}} \frac{1}{\sqrt{2J-1}} = \frac{0,42}{\sqrt{3}} \sqrt{\frac{J^2-1}{J^2}} \quad (3.42)$$

$$|\mu|_q^{J-1} = \frac{0,42}{\sqrt{3}} \sqrt{2J-1} \sqrt{\frac{2J-3}{2J-1}} \frac{1}{\sqrt{2J-3}} = \frac{0,42}{\sqrt{3}} \quad (3.43)$$

Un calcul similaire fournirait une expression analogue pour les autres valeurs du spin total ( $I = 0,1,2,3$ ). Le comportement asymptotique en  $J$  est alors le même et vaut :

$$|\bar{\mu}| = \frac{0,42}{\sqrt{3}} = 0,24 \text{ Debye} . \quad (3.44)$$

Cependant il est intéressant de noter dans le cas de la transition  $P(4)F_1$ , une double dispersion des valeurs des moments de transitions, provenant d'une part des composantes hyperfines ( $F = J-1, J, J+1$ ) et d'autre part des composantes Zeeman (structure en  $M$ ).

Nous avons regroupé dans le tableau 3.4 l'ensemble des valeurs possibles des moments de transition  $\mu_M^F$  pour la raie  $P(4)F_1$ .

## 2) Transition $R(28)A_2$

Pour les valeurs de  $J$  élevées ( $J \geq 20$ ) la dispersion des moments de transition provenant des différentes valeurs de  $F$  (composantes hyperfines) tend à disparaître et seule la dispersion Zeeman (en  $M$ ) subsiste. Celle-ci devient de plus en plus importante lorsque  $J$  croît. La dispersion des coefficients de Clebsch-Gordan est en  $\sqrt{J}$  ou  $J$ , et conduit à une dispersion des puissances lasers correspondant à une impulsion  $\pi/2$  en  $J$  ou  $J^2$ . Seule, la valeur quadratique moyenne restera inchangée et vaudra comme précédemment :

$$\mu = \frac{1}{\sqrt{3}} |\mu_{01}| = 0,24 \text{ D pour } SF_6$$

TABLEAU 3.4

LES VALEURS DES MOMENTS DE TRANSITION  $|\mu_M^F|$  POUR LA RAIE  $P(4)F_1$

		M										$\langle \mu^F \rangle$
$\Delta M$		-5	-4	-3	-2	-1	0	1	2	3	4	
F = J-1 = 3	0	X	X	X	0,18	0,23	0,25	0,23	0,18	X	X	0,242
	$\pm 1$	X	X	0,32	0,26	0,20	0,14	0,08	X	X	X	
F = J = 4	0	X	X	0,16	0,21	0,24	0,24	0,24	0,21	0,16	X	0,235
	$\pm 1$	X	0,32	0,28	0,24	0,19	0,15	0,11	0,06	X	X	
F = J+1 = 5	0	X	0,15	0,20	0,23	0,24	0,25	0,24	0,23	0,20	0,15	0,236
	$\pm 1$	0,33	0,30	0,26	0,23	0,19	0,16	0,12	0,09		X	

Quand la structure hyperfine n'est pas résolue, la valeur quadratique moyenne des moments de transition  $|\mu_M^F|$  vaut 0,21 Debye.

Noter que pour  $\Delta M = 0$ , les moments de transition sont très voisins.

Nous sommes maintenant en mesure de pouvoir calculer la puissance laser  $P_{\pi/2}$  associée à une impulsion  $\pi/2$ , qui correspond à l'optimum de puissance en régime de vol libre pour le signal de franges de Ramsey. Pour le signal de saturation, si l'on souhaite réduire l'élargissement par saturation, il est nécessaire de choisir une puissance notablement inférieure à  $P_{\pi/2}$ .

Quelques valeurs correspondant aux situations expérimentales rencontrées avec les molécules  $\text{SF}_6$ ,  $\text{OsO}_4$ ,  $^{15}\text{NH}_3$ , sont données dans le Tableau 3.5

où

$$P_{\pi/2} = \frac{\pi}{64} \frac{\hbar}{\alpha} \frac{v^2}{(\mu/e)^2}$$

Ce tableau 3.5 montre bien la difficulté rencontrée si l'on désire travailler en champ faible sur les molécules  $\text{SF}_6$  ou  $\text{OsO}_4$ , pour lesquelles la puissance laser doit être notablement inférieure à  $1 \mu\text{W}$  pour éviter tout élargissement par saturation. L'ammoniac ( $^{15}\text{NH}_3$ ) est beaucoup plus favorable de ce point de vue, et nous a permis d'enregistrer des spectres extrêmement proches de la limite imposée par le temps de vol, pour des puissances lasers de l'ordre du  $\mu\text{W}$ . Le spectre de la figure 3.1.5 illustre d'ailleurs très bien l'effet intéressant de contribution anormale des vitesses lentes, en champ faible [40, 113].

Noter également la valeur élevée de l'impulsion  $\pi/2$  pour le jet de  $\text{SF}_6$  où la vitesse est de 940 m/s.

### 3.3.3 POPULATION DES NIVEAUX ET FONCTION DE PARTITION POUR LA MOLECULE $\text{SF}_6$ [43]

La population  $n_a^{(0)}$  à l'équilibre thermodynamique du niveau  $a$  de multiplicité  $g_a$  et d'énergie  $E_a$  s'écrit :

$$n_a^{(0)} = \frac{N}{Z} g_a \exp(-E_a/k_B T), \quad (3.45)$$

où  $N$  est le nombre total de molécules par unité de volume et  $Z$  la fonction de partition donnée par :

$$Z = Z_{\text{vib}} Z_{\text{rot}} Z_n \quad (3.46)$$

TABLEAU 3.5

PUISSANCES CORRESPONDANT A UNE IMPULSION  $\pi/2$  POUR  
QUELQUES MOLECULES ETUDIEES A TRES HAUTE RESOLUTION

$$P_{\pi/2} = \frac{\pi}{64} \frac{h}{\alpha} \frac{v^2}{(\mu/e)^2}$$

MOLECULE. TRANSITION			v(m/s)	$\mu_{01}$ (D)	$\mu$ (D)	$P_{\pi/2}$
SF <sub>6</sub>	P4F <sub>1</sub>	cuve	185	0,42	0,238	1,0 $\mu$ W
SF <sub>6</sub>	P4F <sub>1</sub>	jet	940	0,42	0,21	32 $\mu$ W
SF <sub>6</sub>	J élevé	cuve	185	0,42	0,242	1 $\mu$ W
OsO <sub>4</sub>	J élevé		140	0,17	0,10	3,5 $\mu$ W
<sup>15</sup> NH <sub>3</sub>	R(2,0)	cuve	530	0,23	0,178	15 $\mu$ W

$\mu_{01}$  est le moment de transition vibrationnel

$\mu$  est le moment de transition pour la transition considérée (D)

$P_{\pi/2}$  est la puissance laser correspondant à une impulsion  $\pi/2$  (W)

$$P_{\pi/2} = 1,64 \times 10^{-12} v^2 / \mu^2 \text{ (W)}$$

N.B. Pour l'ammoniac :

$$\mu = \mu_{01} \left\{ \frac{(J+1)^2 - K^2}{(J+1)(2J+1)} \right\}^{1/2} \quad \text{avec} \quad J = 2, K = 0 \quad [114]$$

La fonction de partition vibrationnelle  $Z_{\text{vib}}$  est donnée par [177]

$$Z_{\text{vib}}^{-1}(T) = (1 - e^{-773,6\beta})(1 - e^{-642,1\beta})^2(1 - e^{-947,968\beta})^3 \\ \times (1 - e^{-615,03\beta})^3(1 - e^{-522,9\beta})^3(1 - e^{-346\beta})^3 \quad (3.47)$$

où  $\beta = hc/k_B T = 1,438 \ 832 \ 342/T \text{ cm.}$  A titre d'exemple :

$$Z_{\text{vib}}^{-1}(293^\circ\text{K}) = 0,321 \ 77 . \quad (3.48)$$

Les fonctions de partition nucléaire et rotationnelle sont calculées simultanément, pour tenir compte des propriétés de symétrie des fonctions d'onde (principe de Pauli).

On peut partir du facteur de dégénérescence classique  $(2J+1)^2$  du niveau  $J$  d'une toupie sphérique multiplié par la dégénérescence nucléaire  $(2i+1)^6 = 2^6$  et divisé par le nombre de symétrie  $\sigma = 24$  pour  $\text{SF}_6$  [115]

$$Z_{\text{rot}}Z_{\text{n}} = \frac{8}{3} \sum_{J=0}^{\infty} (2J+1)^2 \exp[-\alpha J(J+1)] \approx \frac{8\pi^{1/2}}{3} \alpha^{-3/2} \exp(\alpha/4) \quad (3.49)$$

(la somme correspondante est calculée dans la référence [116]), où  $\alpha = B_0 hc/kT = 0,130 \ 49/T$ .

On peut aussi partir de la réduction de  $D^{(J)}$  en représentation du groupe  $O$ , et effectuer la somme discrète correspondante. On a pu vérifier que au-delà de 1 K, les deux résultats sont pratiquement identiques :

T(K)	Fonction exacte	Fonction approchée
1	102,8468	103,5966
2	288,2560	288,2748
3	526,7227	526,7230
•	•	•
•	•	•
•	•	•
10	3181,226	3181,227

Sachant que pour  $J = 12p$ ,  $p$  entier, cette réduction s'écrit  $(A_1 + A_2 + 2E + 3F_1 + 3F_2)p$  soit une multiplicité de  $64p = 16 J/3$ , on retrouve un facteur de dégénérescence qui tend vers  $(8/3)(2J+1)^2$ .

La population d'un niveau rotationnel du niveau vibrationnel fondamental de type de symétrie  $nC$  est donc :

$$n_{JnC} = \frac{N}{Z} g_{JnC} (2J+1) \exp [-\alpha J(J+1)] \quad (3.50)$$

où  $g_{JnC} = 2, 10, 8, 6, 6$  suivant que  $C$  est  $A_1$ ,  $A_2$ ,  $E$ ,  $F_1$  ou  $F_2$  ; pour un sous-niveau hyperfin  $n_F = n_{JnC} / g_{JnC}$ .

A titre d'exemple, prenons  $J = 4$  et  $C = F_1$  (cas de la raie  $P(4)F_1$ ) Dans l'hypothèse d'un gaz parfait à la température ambiante ( $T = 293$  K), à une pression de  $10^{-5}$  Torr dans la grande cuve d'absorption, nous avons :

$$N = 3,295 \times 10^{17} \text{ molécules/m}^3$$

$$Z_{\text{vib}}^{-1} (293 \text{ K}) = 0,32177$$

$$Z_{\text{rot}} Z_n (293 \text{ K}) = 5,029 \times 10^5$$

soit,

$$n_{4F_1} = 1,128 \times 10^{13} \text{ molécules/m}^3 \quad (3.51)$$

Notons que la population de chaque sous-niveau hyperfin est six fois plus faible :

$$n_{4F_{1,i}} = 1,88 \times 10^{12} \text{ molécules/m}^3$$

Nous pouvons alors calculer le flux effectif de molécules concernées :

$$\Phi_{\text{eff}} = n_{4F_{1,i}} u \frac{L}{k} \simeq 6,67 \times 10^{10} \text{ molécules/s} \quad (3.52)$$

Avec  $u = 185 \text{ m/s}$ ,  $L = 120 \text{ m}$ , et  $k = \frac{2\pi}{\lambda} = 6,28 \times 10^5 \text{ m}^{-1}$ .

L'ordre de grandeur de la puissance absorbée par chacune des composantes hyperfines vaut alors :

$$P_{4 F_1, i} = h\nu \Phi_{\text{eff}} = 1,2 \times 10^{-9} \text{ W.}$$

A titre de comparaison, considérons la transition  $R(28)A_2^0$ , qui correspond sensiblement au maximum de la fonction de partition rotationnelle à la température ambiante. Le maximum de cette fonction (expression 3.50) est obtenu pour la valeur de  $J$  suivante :

$$J_{\text{max}} = \frac{1}{2} \left[ \sqrt{\frac{2kT}{B}} - 1 \right] \quad (3.53)$$

$$\text{Pour } SF_6 \quad B = 0,09 \text{ cm}^{-1} \quad \text{soit} \quad J_{\text{max}} \approx 33$$

$$\text{Pour } NH_3 \quad B = 9,94 \text{ cm}^{-1} \quad \text{soit} \quad J_{\text{max}} \approx 3$$

L'équation (3.50) permet d'obtenir :

$$n_{28 A_2, i} = 4,5 n_{4 F_1, i}$$

Ainsi chaque sous-niveau hyperfin correspondant à  $J = 28$  et  $C = A_2$  est 4,5 fois plus peuplé que chaque sous-niveau hyperfin correspondant à  $J = 4$  et  $C = F_1$ . On en déduit l'ordre de grandeur de la puissance laser absorbée pour chaque composante hyperfine de la transition  $R(28)A_2^0$

$$R_{28 A_2, i} \approx 5 \times 10^{-9} \text{ W}$$

#### • Comparaison avec la valeur mesurée pour $R(28)A_2^0$

Expérimentalement, à l'aide du gain  $G$  de la détection synchrone et de la sensibilité en Volt/W du détecteur, il est possible de remonter à la puissance  $P_{\text{sat}}$  correspondant au signal de saturation. La puissance mesurée sur le détecteur est de l'ordre de  $7 \cdot 10^{-11} \text{ W}$ , correspondant à un contraste de  $5 \times 10^{-5}$  de la raie de saturation, le champ laser ayant une puissance de  $1,4 \mu\text{W}$ . Or la puissance mesurée est environ égale à 1/3 de

la puissance réellement absorbée par les molécules (à cause des réflexions sur les miroirs, du filtre spatial et du polariseur). Finalement la puissance absorbée vaut :

$$P_{\text{sat}} \approx 2 \times 10^{-10} \text{ W}$$

en accord raisonnable avec la valeur théorique de  $5 \times 10^{-9}$  Watt sachant que l'efficacité d'excitation des molécules (qui a été supposée de l'ordre de 1) ne peut être que notablement inférieure à 1, à cause de la distribution des vitesses  $v_x$  de traversée des faisceaux et de la dimension  $y$  du problème (même si la puissance laser est à l'optimum, un certain nombre de molécules ne couperont que les ailes du faisceau gaussien).



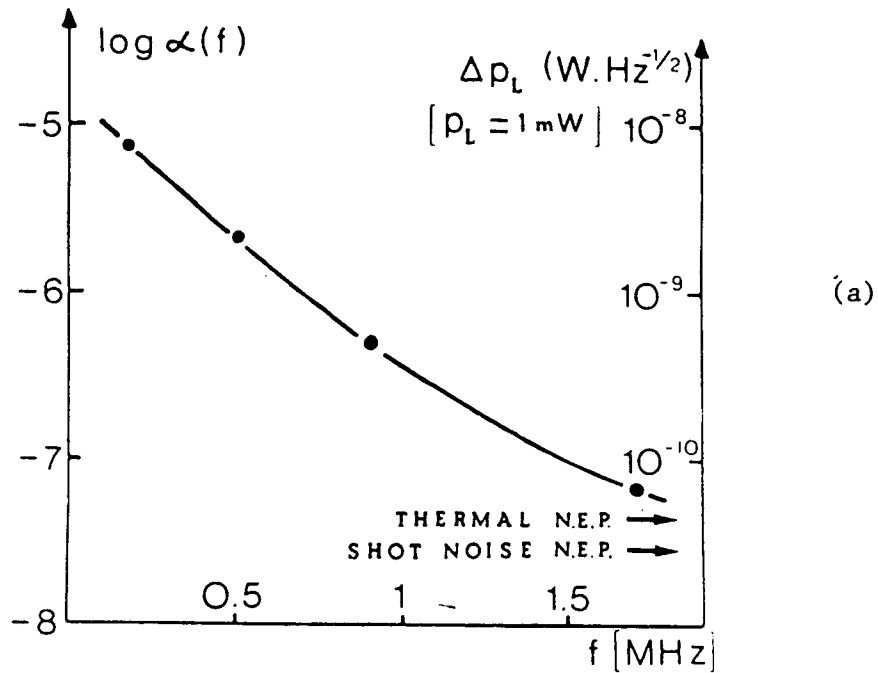
### 3.4 LA TECHNIQUE DE MODULATION À HAUTE FRÉQUENCE

#### 3.4.1 INTRODUCTION

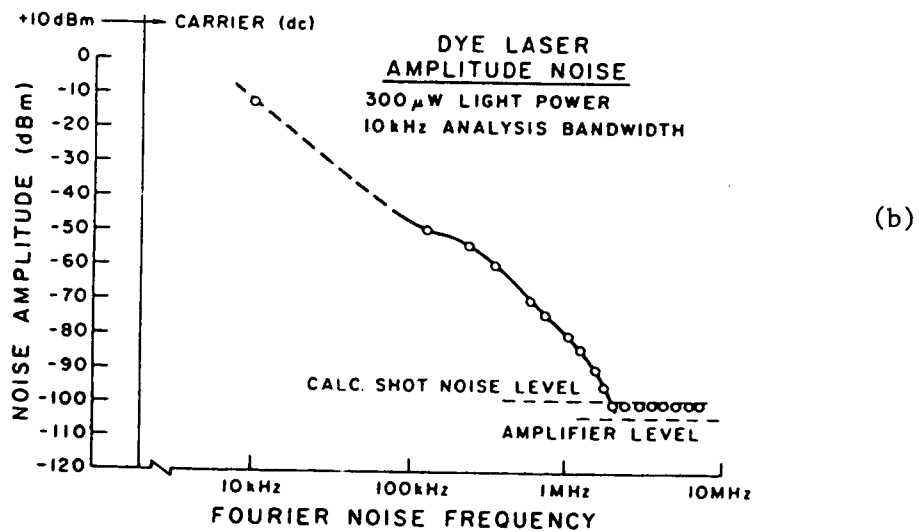
L'enregistrement de raies de saturation de plus en plus étroites, utilisant une modulation de fréquence de l'onde laser, nécessite une réduction à la fois de la fréquence et de l'amplitude de cette modulation sous peine d'élargir la résonance moléculaire. La résolution actuelle du spectromètre ( $\leq 1$  kHz) nous conduit donc à enregistrer les spectres avec des fréquences de modulation inférieures au kHz (typiquement 200-500 Hz) et avec un indice lui aussi très faible ( $\frac{\Delta\Omega}{\Omega}$  de l'ordre de l'unité). Dans ces conditions, le bruit d'amplitude du laser (bruit de source, proportionnel à l'intensité) et le bruit en  $\frac{1}{f}$  du détecteur et des composants électroniques, viennent détériorer notablement la sensibilité du système de détection. Cette limitation devient fondamentale dans le cas des lasers ioniques ( $\text{Kr}^+$ ,  $\text{Ar}^+$ ) et des lasers à colorants et centres colorés pompés par de tels lasers. Le spectre de bruit d'amplitude peut alors s'étendre sur plusieurs Megahertz, comme le montre la figure 3.4.1, qui représente le spectre de bruit d'amplitude d'un laser à colorant en anneau [81,77]. Pour une puissance de 300  $\mu\text{W}$  la courbe (b) montre que le bruit d'amplitude du laser n'atteint le niveau théorique du bruit de photons que pour des fréquences supérieures à 2 MHz. Or la plupart des expériences utilisaient des fréquences de modulation inférieures à 10 kHz et par conséquent se situaient à un niveau de bruit d'au moins 90 dB au-dessus de la limite théorique du bruit de photons. Ceci explique le développement de nombreuses techniques pour tenter de s'affranchir du bruit d'amplitude des sources. Deux directions principales ont été suivies :

1. Utiliser des techniques telles que spectroscopie de polarisation ou d'interférence qui permettent de réduire le bruit d'amplitude du laser sur le signal utile [119, 78].

2. Utiliser une fréquence de modulation très élevée (et généralement très supérieure à la largeur de raie. C'est la spectroscopie de bandes latérales en modulation haute fréquence (ou encore détection hétérodyne), que nous allons présenter maintenant. Cette technique, tout d'abord développée dans les années 1946 par POUND dans le domaine micro-ondes [120] a récemment été étendue au domaine optique par DREVER, HALL [71, 77], BJORKLUND [72] et DUCLOY [73].



Bruit de puissance du laser  $\Delta P_L$ , en fonction de la fréquence  $f$ , extrait de la référence [ 81 ].



Extrait de la référence [ 77 ]

FIGURE 3.4.1 (a) et (b)

Spectres de bruit d'amplitude de lasers à colorants, illustrant le gain en détectivité apporté par les techniques de modulation à haute fréquence.

L'idée est de "coder" l'information à une fréquence où le bruit d'amplitude du laser est limité par le bruit de photons, c'est-à-dire dans le cas du laser à colorant cité auparavant [81,77] au-delà de 2 MHz. Pour de tels lasers, la transposition de la technique hétérodyne du domaine micro-ondes au domaine visible a été rendue possible grâce à l'utilisation de modulateurs électro-optiques qui permettent des modulations de fréquence de plusieurs dizaines voire plusieurs centaines de Mégahertz [72-77].

En ce qui concerne les lasers à  $\text{CO}_2$ , nous avons vu que le bruit d'amplitude ne s'étendait pas au-delà d'une vingtaine de kilohertz. Des fréquences de modulation supérieures à 20 kHz permettent ainsi d'atteindre quasiment la limite du bruit de photons comme nous l'avons observé et décrit précédemment. Dans le cas de nos lasers à gaz ( $\text{CO}_2$  et  $\text{N}_2\text{O}$ ) nous avons pu moduler l'onde laser jusqu'à des fréquences de l'ordre de 100 kHz, avec un indice raisonnable (jusqu'à 2), grâce à l'utilisation de céramiques piézo-électriques relativement courtes ( $L = 3 \text{ mm}$ ) supportant le miroir de sortie de la cavité laser.

Le but de ce paragraphe est de présenter tout d'abord le formalisme qui permet de calculer la forme de raie en champ faible, lorsque les champs lasers sont modulés à des fréquences grandes devant la largeur de raie. Ensuite nous introduirons l'effet d'une modulation d'amplitude associée à cette modulation de fréquence pour rendre compte de l'asymétrie de certains spectres expérimentaux. Enfin nous comparerons la sensibilité de la détection hétérodyne haute fréquence à la technique classique de modulation basse fréquence où la fréquence de modulation est inférieure à la largeur de raie.

### 3.4.2 MODULATION DE PHASE (OU FREQUENCE)

#### 3.4.2.1 Champs lasers modulés en phase

Désignons par  $E_s$  et  $E_p$  les champs saturants et sondes (d'intensités relatives quelconques) et  $\Omega_s$  et  $\Omega_p$  les fréquences de modulation utilisées. Ces champs s'écrivent :

$$\begin{aligned} E_s &= \frac{1}{2} \mathcal{E}_s \exp \left\{ i \left[ \omega t + \frac{\delta_s}{\Omega_s} \sin(\Omega_s t) + kz + \varphi_s \right] \right\} + \text{c.c.} \\ E_p &= \frac{1}{2} \mathcal{E}_p \exp \left\{ i \left[ \omega t + \frac{\delta_p}{\Omega_p} \sin(\Omega_p t) - kz + \varphi_p \right] \right\} + \text{c.c.} \end{aligned} \quad (3.55)$$

Ces champs peuvent être exprimés en fonction de leurs composantes de Fourier :

$$E_s = \frac{1}{2} \hat{E}_s \sum_{n=-\infty}^{+\infty} J_n\left(\frac{\delta_s}{\Omega_s}\right) \exp \left\{ i(\omega + n \Omega_s)t + kz + \varphi_s \right\} + c.c. \quad (3.56)$$

$$E_p = \frac{1}{2} \hat{E}_p \sum_{m=-\infty}^{+\infty} J_m\left(\frac{\delta_p}{\Omega_p}\right) \exp \left\{ i(\omega + m \Omega_p)t - kz + \varphi_p \right\} + c.c. \quad (3.57)$$

où  $J_n$  est la fonction de Bessel d'ordre  $n$  (entier) et  $\frac{\delta_s}{\Omega_s}$ ,  $\frac{\delta_p}{\Omega_p}$  sont les indices de modulation des champs saturants et sondes. Ainsi, le système physique (molécules, Fabry-Perot) est soumis à deux peignes de fréquences centrés à  $\omega$ . Dans chaque peigne, la composante  $n(m)$  est séparée de ses deux voisines par  $\Omega_s$  (ou  $\Omega_p$ ) et présente une amplitude proportionnelle à  $J_n$  ( $J_m$ ).

Dans nos expériences, la détection du signal de saturation s'effectue sur le champ rétro-réfléchi  $E_p$ , provenant de la cuve d'absorption. Pour comprendre l'origine physique de l'apparition d'un signal à la fréquence de modulation  $\Omega_p$ , supposons tout d'abord que seul le champ  $E_p$  est présent sur le système ( $\Omega_s = 0$ ).

En l'absence de molécules dans la cuve, lorsque ce champ  $E_p$  est reçu par le photodétecteur, sensible au carré du champ  $|E_p|^2$ , aucun signal ne sera créé à la fréquence de démodulation  $\Omega_p$ , à cause de la parité des fonctions de Bessel ( $J_n = (-1)^n J_{-n}$ ). Les signaux provenant de  $J_n J_{n+1}$  et  $J_{-n} J_{-(n+1)}$  seront à tout instant de signes opposés.

Par contre, lorsque le système physique (molécules ou Fabry-Perot) sera résonnant avec une (ou plusieurs) bande latérale (composante de Bessel  $J_n$ ), à la fréquence  $\omega_0 = \omega + n \Omega$ , cette composante  $J_n$  verra son amplitude et sa phase modifiées par le milieu résonnant, alors que  $J_{-n}$ ,  $J_{n+1}$  et  $J_{-(n+1)}$  ne seront pas affectées.

L'équilibre entre les signaux à la fréquence  $\Omega_p$ , provenant de  $J_n J_{n+1}$  et  $J_{-n} J_{-(n+1)}$  sera détruit de sorte qu'il apparaîtra un signal à la fréquence  $\Omega_p$ .

Cette description simplifiée s'applique également en spectroscopie de saturation où  $E_s$  et  $E_p$  sont simultanément présents sur le milieu résonnant.

### 3.4.2.2 Expression générale de la forme de raie

Le calcul de la forme de raie en modulation haute fréquence, dans la limite des champs lasers faibles est une application directe de la technique diagrammatique développée par Ch.J. BORDE dans la référence [40] et calculée dans [123]. L'expression (3.58) donne la puissance absorbée par les molécules, dans une théorie au quatrième ordre de perturbation.

$$\begin{aligned}
 \frac{dW}{dz} = & - \hbar \omega \frac{\sqrt{\pi}}{ku} (N_a - N_b) \frac{\mu^4 \epsilon_S^2 \epsilon_P^2}{16 \hbar^4} \left[ \iint dx dy U_S U_S^* U_P U_P^* \right] \\
 & \times \text{Re} \left\{ 4 \sum_{m, m', n, n'}^{+\infty} \sum_{\alpha=a, b} C_{\alpha} J_m(\delta_P/\Omega_P) J_{m'}^*(\delta_P/\Omega_P) J_n(\delta_S/\Omega_S) J_{n'}^*(\delta_S/\Omega_S) \right. \\
 & \times \left( \exp\{i[(m-m')\Omega_P + (n-n')\Omega_S]t\} \int_0^{+\infty} dv_r F(v_r) \int_0^{+\infty} d\tau \int_0^{+\infty} d\tau' \right. \\
 & \times \exp[-v_r^2 (A\tau'^2 + 2B\tau\tau' + C\tau^2)] \exp[-(\gamma_a + i(n-n')\Omega_S)\tau'] \\
 & \times \left. \left. \exp[-2(\gamma + i(\omega_0 - \omega) + i(\frac{1}{2}n - n')\Omega_S - i\frac{1}{2}m'\Omega_P)\tau] \right) \right\} \quad (3.58)
 \end{aligned}$$

où nous avons conservé les notations et conventions de la référence [123];  $F(v_r)$  est la distribution transverse des vitesses et les coefficients  $C_{\alpha}$  prennent en compte la polarisation laser et la dégénérescence des niveaux.

Les fonctions  $U_S$  et  $U_P$  décrivent la dépendance gaussienne transverse des faisceaux lasers.

Pour des ondes planes ( $U_S \equiv U_P \equiv 1$ ,  $A = B = C = 0$ ), les intégrales précédentes peuvent être calculées facilement :

$$\begin{aligned}
 \left\{ \right\} = & 4 \text{Re} \sum_{\substack{m, m', n, n' \\ \alpha=a, b}} J_m(\delta_P/\Omega_P) J_{m'}^*(\delta_P/\Omega_P) J_n(\delta_S/\Omega_S) J_{n'}^*(\delta_S/\Omega_S) \\
 & \times \left( \exp[i\{(m-m')\Omega_P + (n-n')\Omega_S\}t] \right. \\
 & \times \frac{C_{\alpha}}{\gamma_{\alpha} + i(n-n')\Omega_S} \frac{1}{2\gamma + 2i(\omega_0 - \omega) - im'\Omega_P + i(n-2n')\Omega_S} \left. \right) \quad (3.59)
 \end{aligned}$$

Dans cette étude nous nous limiterons au cas des ondes planes; cependant, pour le cas des faisceaux lasers gaussiens, les coefficients A, B, C sont évalués dans la référence [ 40 ] et les intégrations par rapport à  $v_r$  et  $\tau'$  sont effectuées comme dans le cas non modulé.

La structure due à l'effet de recul, ainsi que l'effet Doppler transverse peuvent être inclus simplement en changeant les termes suivants [41] :

$$\omega_0 \longrightarrow \omega_0 \left[ 1 + \frac{\hbar \omega_0}{2Mc^2} \right] \quad (3.60)$$

dans le terme de population du niveau inférieur,

$$\omega_0 \longrightarrow \omega_0 \left[ 1 - \frac{\hbar \omega_0}{2Mc^2} \right] \quad (3.61)$$

dans le terme de population du niveau supérieur

$$\omega \longrightarrow \omega \times \frac{1}{\sqrt{1 - v^2/c^2}} \approx \omega \left( 1 + \frac{v_r^2}{2c^2} \right) \quad (3.62)$$

La forme très générale de l'expression (3.59) permet de donner immédiatement l'allure du signal de saturation dans les différentes situations expérimentales :

- Détection hétérodyne du signal sonde modulé sans modulation du faisceau saturant ( $n = n' = 0$ ).
- Détection hétérodyne de la modulation induite sur le faisceau sonde non modulé par le faisceau saturant modulé ( $m = m' = 0$ ), encore appelé transfert de modulation [ 73 ], [ 123 ].
- Détection hétérodyne du signal sonde modulé avec modulation du faisceau saturant.

C'est ce dernier cas que nous allons développer maintenant, car c'est le cas qui correspond à nos expériences.

### 3.4.2.3 Cas où les faisceaux saturants et sondes sont modulés à la même fréquence

Nous nous placerons dans l'hypothèse où la fréquence de modulation est très supérieure à la largeur de raie ( $\Omega \gg \gamma_\alpha$ ) et par conséquent nous négligerons les termes tels que  $n \neq n'$ . D'autre part les fréquences de modulation  $\Omega_S$  et  $\Omega_P$ , ainsi que les indices de modulation  $\delta_S/\Omega_S$  et  $\delta_P/\Omega_P$  seront pris égaux ( $\delta_S/\Omega_S = \delta_P/\Omega_P = \beta$ ). Finalement l'expression de la forme de raie (3.59) devient::

$$S = \sum_{n,m,m'} S(n,m,m') = 2 \sum_{\substack{n,m \\ m'}} \text{Re} \left\{ J_m(\beta) J_{m'}^*(\beta) J_n(\beta) J_n^*(\beta) \right. \\ \times \exp [i(m-m') \Omega t] \times \frac{C_\alpha}{\gamma_\alpha} \\ \times \left. \frac{1}{\gamma - i [(\omega - \omega_0) + (n+m') \frac{\Omega}{2}]} \right\} \quad (3.63)$$

Il ressort clairement de cette formule que les champs sonde et saturant interfèrent pour produire sur le détecteur un battement hétérodyne à la fréquence  $|m-m'| \Omega$  ;

Après démodulation de ce battement, le signal apparaît alors comme un ensemble de résonances situées aux diverses fréquences  $(n+m') \frac{\Omega}{2}$  par rapport à la fréquence moléculaire  $\omega_0$ .

Considérons le cas où la démodulation s'effectue à la fréquence  $\Omega$  :  $|m-m'| = 1$ .

Pour les indices de modulation couramment utilisés ( $\frac{\delta}{\Omega} \leq 1$ ), il est suffisant de tronquer le développement de Bessel (3.56) au terme en  $J_4$  inclus. Le tableau 3.6 rassemble tous les termes qui contribuent aux résonances centrées à  $\omega_0 \pm p \frac{\Omega}{2}$  où  $p$  s'étend de 0 à + 3.

Chaque parenthèse indique les valeurs des trois paramètres  $(n,m',m)$  qui permettent d'écrire immédiatement chaque terme de la somme (3.63). A chaque couple de parenthèses correspond un terme en  $\exp i \Omega t$  ou  $\exp -i \Omega t$  :

$$(n,m',m = m'+1) \longleftrightarrow J_n J_n^* J_{m'}^* J_m e^{i \Omega t} \\ (n,m',m = m'-1) \longleftrightarrow J_n J_n^* J_{m'}^* J_m e^{-i \Omega t}$$

TABEAU 3.6

TERMES DU DEVELOPPEMENT DE BESSEL, CALCUL JUSQU'AU J4

LIRE :  $(n, m', m) \rightarrow J_n \cdot J_n^* \cdot J_{m'}^* \cdot J_m \cdot \exp[(m-m') \Omega t]$

Position de la résonance par rapport à $\omega_0$						
$-3\Omega/2$	$-\Omega$	$-\Omega/2$	0	$+\Omega/2$	$+\Omega$	$+3\Omega/2$
$(-4, 1, 2)$	$(-4, 2, 3)$	$(-4, 3, 4)$				
$(-4, 1, 0)$	$(-4, 2, 1)$	$(-4, 3, 2)$	$(-4, 4, 3)$			
$(-3, 0, 1)$	$(-3, 1, 2)$	$(-3, 2, 3)$	$(-3, 3, 4)$			
$(-3, 0, -1)$	$(-3, 1, 0)$	$(-3, 2, 1)$	$(-3, 3, 2)$	$(-3, 4, 3)$		
$(-2, -1, 0)$	$(-2, 0, 1)$	$(-2, 1, 2)$	$(-2, 2, 3)$	$(-2, 3, 4)$		
$(-2, -1, -2)$	$(-2, 0, -1)$	$(-2, 1, 0)$	$(-2, 2, 1)$	$(-2, 3, 2)$	$(-2, 4, 3)$	
$(-1, -2, -1)$	$(-1, -1, 0)$	$(-1, 0, 1)$	$(-1, 1, 2)$	$(-1, 2, 3)$	$(-1, 3, 4)$	
$(-1, -2, -3)$	$(-1, -1, -2)$	$(-1, 0, -1)$	$(-1, 1, 0)$	$(-1, 2, 1)$	$(-1, 3, 2)$	$(-1, 4, 3)$
$(0, -3, -2)$	$(0, -2, -1)$	$(0, -1, 0)$	$(0, 0, 1)$	$(0, 1, 2)$	$(0, 2, 3)$	$(0, 3, 4)$
$(0, -3, -4)$	$(0, -2, -3)$	$(0, -1, -2)$	$(0, 0, -1)$	$(0, 1, 0)$	$(0, 2, 1)$	$(0, 3, 2)$
$(1, -4, -3)$	$(1, -3, -2)$	$(1, -2, -1)$	$(1, -1, 0)$	$(1, 0, 1)$	$(1, 1, 2)$	$(1, 2, 3)$
	$(1, -3, -4)$	$(1, -2, -3)$	$(1, -1, -2)$	$(1, 0, -1)$	$(1, 1, 0)$	$(1, 2, 1)$
	$(2, -4, -3)$	$(2, -3, -2)$	$(2, -2, -1)$	$(2, -1, 0)$	$(2, 0, 1)$	$(2, 1, 2)$
		$(2, -3, -4)$	$(2, -2, -3)$	$(2, -1, -2)$	$(2, 0, -1)$	$(2, 1, 0)$
		$(3, -4, -3)$	$(3, -3, -2)$	$(3, -2, -1)$	$(3, -1, 0)$	$(3, 0, 1)$
			$(3, -3, -4)$	$(3, -2, -3)$	$(3, -1, -2)$	$(3, 0, -1)$
			$(4, -4, -3)$	$(4, -3, -2)$	$(4, -2, -1)$	$(4, -1, 0)$
				$(4, -3, -4)$	$(4, -2, -3)$	$(4, -1, -2)$

FONCTIONS DE BESSEL QUI CONTRIBUENT AUX DIVERSES RESONANCES CENTREES A  $\omega_0 \pm p \frac{\Omega}{2}$  avec  $p = 0, \dots, 3$ , LORSQUE LA FREQUENCE DE DETECTION  $\Omega$  EST TRES SUPERIEURE A LA LARGEUR DE RAIE. LES FAISCEAUX SONDES ET SATURANTS SONT MODULES.



Le signal s'écrit alors :

$$\begin{aligned} T &= \sum_{n,m',m} S(n,m,m') \\ &= 2 \operatorname{Re} \sum_n (L_n + i D_n) (E_n e^{i\Omega t} + F_n e^{-i\Omega t}) \end{aligned} \quad (3.64)$$

où :

$$L_n + i D_n = \frac{1}{\gamma - i \left[ (\omega - \omega_0 + n \frac{\Omega}{2}) \right]} \quad (3.65)$$

est la lorentzienne complexe habituelle, centrée à  $\omega = \omega_0 - n \frac{\Omega}{2}$  dont la partie réelle est un profil d'absorption, tandis que la partie imaginaire est un profil de dispersion. Les coefficients  $E_n$  et  $F_n$  sont des combinaisons linéaires des quadruples produits des fonctions de Bessel présentés dans le Tableau 3.7 .

$$E_n = \sum_k J_k J_k^* J_{-(k+n)}^* J_{-(k+n)+1} \quad (3.66)$$

$$F_n = \sum_k J_k J_k^* J_{-(k+n)}^* J_{-(k+n)-1} \quad (3.67)$$

La somme est étendue à tous les termes tels qu'aucun des indices ne dépasse 4 en valeur absolue.

Le signal à la fréquence  $\Omega$  comporte une information sur l'absorption et la dispersion du milieu, que l'on détecte en démodulant en phase ( $\varphi = 0$  absorption) ou en quadrature ( $\varphi = \pi/2$  dispersion).

Nous obtenons les profils d'absorption (A) et de dispersion (D) bien connus (ici  $E_n$  et  $F_n$  sont réels) :

$$A = [T \times \cos \Omega t]$$

$$\begin{aligned} &= 2 \operatorname{Re} \sum_n (L_n + i D_n) (E_n e^{i\Omega t} + F_n e^{-i\Omega t}) \frac{(e^{i\Omega t} + e^{-i\Omega t})}{2} \\ &= \sum_n (E_n + F_n) L_n + (\text{termes à } 2\Omega \text{ filtrés}) \end{aligned} \quad (3.68)$$

$$D = T \times \sin \Omega t$$

$$= - \sum_n (E_n - F_n) D_n + (\text{termes à } 2\Omega \text{ filtrés}). \quad (3.69)$$

TABLEAU 3.7

COEFFICIENTS DES SIGNAUX EN PHASE ET EN QUADRATURE EN MODULATION A HAUTE FRE-  
QUENCE ( $\Omega$ ) APRES DETECTION A LA FREQUENCE  $\Omega$  . DEVELOPPEMENT JUSQU'AU  $J_2$  INCLUS.  
LES FAISCEAUX SONDES ET SATURANTS SONT MODULES A LA MÊME FREQUENCE ( $\Omega$ ).

Position de la résonance $\omega_0 + n \frac{\Omega}{2}$	Signal en phase:absorption Coefficient de $L_n$	Signal en quadrature:dispersion Coefficient de $D_n$
$-3 \Omega/2$	$A = -J_0 J_1 J_2^2 - J_1^3 J_2 - J_1 J_2^3$	$D = J_0 J_1 J_2^2 + J_1^3 J_2 - J_1 J_2^3$
$- \Omega$	$B = -J_0 J_1^3 - J_0^2 J_1 J_2 - J_1^3 J_2$	$E = J_0 J_1^3 + J_0^2 J_1 J_2 - 2J_0 J_1 J_2^2 - J_1^3 J_2$
$- \Omega/2$	$C = -J_0^3 J_1 - J_0^2 J_1 J_2 + J_0 J_1 J_2^2$ $- J_1^3 J_2 + J_1 J_2^3$	$F = J_0^3 J_1 - 2J_0 J_1^3 - J_0^2 J_1 J_2$ $+ J_0 J_1 J_2^2 + J_1^3 J_2 - J_1 J_2^3$
0	0	$- 2J_0^3 J_1 + 2J_0 J_1^3 - 2J_1^3 J_2 + 2J_1 J_2^3$
$+ \Omega/2$	- C	+ F
$+ \Omega$	- B	E
$+ 3 \Omega/2$	- A	D

La figure 3.4.2 présente les profils d'absorption (a) et de dispersion (b) obtenus lorsqu'on balaye la fréquence du laser autour de la résonance moléculaire  $\omega_0$ . On a choisi  $\Omega = 20\gamma$  et  $\beta = 0,6$ .

Noter l'absence de résonance centrée à  $\omega_0$  dans la phase d'absorption. Les résonances d'absorption sont centrées à  $\omega_0 \pm \frac{\Omega}{2}$ ,  $\pm \Omega$ ,  $\pm \frac{3}{2}\Omega$  et sont des lorentziennes de largeur à mi-hauteur  $2\gamma$ . Ces résonances proviennent de classes de vitesses  $v_z$  non nulles, tout comme les résonances de croisement de niveaux en spectroscopie de saturation usuelle. A la différence du cas où l'on module à faible fréquence, tout élargissement des résonances par modulation a disparu. On a ainsi directement accès à l'élargissement provenant du temps de vol des molécules à travers le faisceau et aussi éventuellement à l'élargissement collisionnel ou par saturation.

Les signaux de dispersion présentent une décroissance lente, caractéristique, en  $1/(\omega - \omega_0)$  sur les ailes des résonances et la forme de dispersion centrale présente toutes les qualités requises pour générer un bon signal d'erreur pour l'asservissement d'un laser en fréquence : symétrie impaire, forte pente à  $\omega = \omega_0$ , et signe correct sur  $[\omega_0 - \frac{\Omega}{2}, \omega_0 + \frac{\Omega}{2}]$ .

A faible indice de modulation, il existe un facteur deux entre les amplitudes des courbes de dispersion centrées à  $\omega = \omega_0$  et  $\omega = \omega_0 \pm \frac{\Omega}{2}$  ( $2J_0^3 J_1$  et  $J_0^3 J_1$  sont les termes prépondérants). Nous verrons plus loin que ceci est un critère très sensible pour vérifier si l'on est effectivement en champ laser faible.

### 3.4.3 MODULATION D'AMPLITUDE ASSOCIEE A UNE MODULATION DE PHASE

Comme nous le verrons au paragraphe suivant, nous avons observé une asymétrie de certains spectres expérimentaux, tant en absorption qu'en dispersion, provenant de l'utilisation de cette technique de modulation à haute fréquence. Stimulés par la récente publication de LENTH [122] sur l'influence d'une modulation d'amplitude superposée à la modulation de fréquence (ou de phase), nous nous sommes demandés si cette asymétrie ne provenait pas d'une modulation d'amplitude.

Dans le cas des lasers visibles ou à centres colorés, si la modulation de fréquence est réalisée par un cristal électro-optique dans la cavité, il est possible, si le profil d'émission en fonction de la fréquence est horizontal, de réaliser une modulation de phase avec un taux de modulation

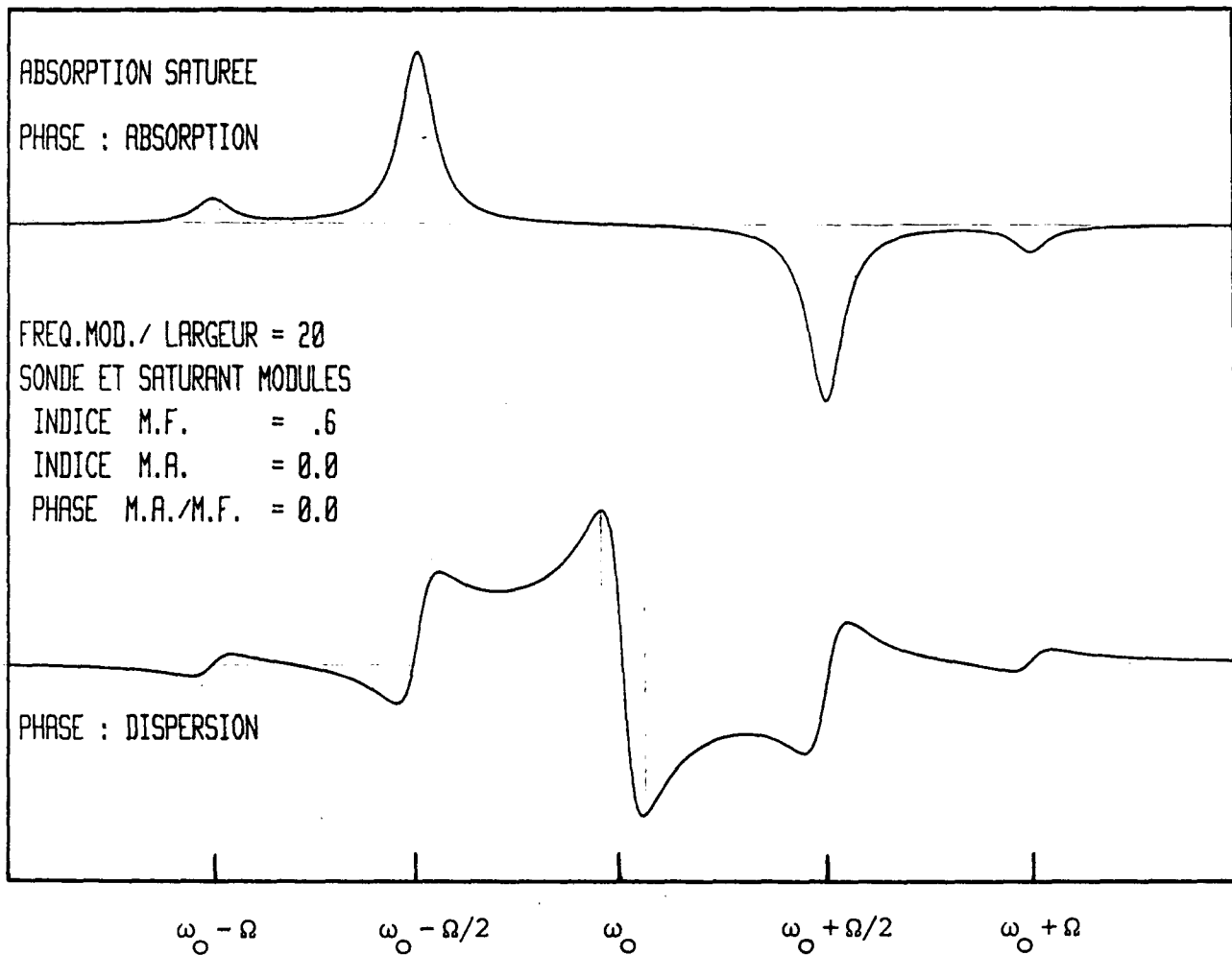


FIGURE 3.4.2

Signaux de saturation en phase et en quadrature en modulation à haute fréquence lorsque les faisceaux sondes et saturants sont modulés à la même fréquence. Théorie en champ faible.

M.F. : modulation de fréquence.

M.A. : modulation d'amplitude (voir paragraphe 3.4.3).

d'amplitude extrêmement réduit. Par contre, dans le cas des lasers à  $\text{CO}_2$  où le profil d'émission (la puissance de sortie) ne s'étend que sur une centaine de MHz pour les lasers classiques, et 550 MHz pour les lasers guides d'ondes, une modulation de fréquence à une fréquence de 100 kHz, par exemple, avec un indice de 0,1, induit nécessairement une modulation d'amplitude dans la gamme des  $10^{-4}$  -  $10^{-6}$ . De plus, dans nos expériences, la modulation de fréquence était réalisée à l'aide d'une courte céramique piézo-électrique supportant le miroir de sortie du laser et modulant donc la longueur de la cavité du laser. Le caractère mécanique de ce système laser-miroir-céramique, modulé à une fréquence supérieure à sa première fréquence de résonance (20 kHz), peut produire aussi des fluctuations angulaires, ou des fluctuations des caractéristiques du faisceau de sortie, à cette fréquence de modulation. Nous montrons maintenant comment le formalisme développé pour la modulation de phase (ou de fréquence) peut être étendu au cas où l'on superpose une modulation d'amplitude à la même fréquence.

Dans le cas d'une modulation à la fois de fréquence (M.F.) et d'amplitude (M.A.), le champ électrique peut s'écrire de la manière suivante :

$$\mathcal{E}(t) = \frac{1}{2} \mathcal{E}_0 [1 + M \sin(\Omega t + \varphi)] \exp [i(\omega t + \beta \sin \Omega t)] \quad (3.70)$$

où  $M$  représente l'indice de modulation d'amplitude et  $\varphi$  la différence de phase entre M.A. et M.F. .

Nous pouvons, de même, décomposer les champs sondes et saturants en fonction de leurs composantes de Fourier :

$$\begin{aligned} E_S &= \frac{1}{2} \mathcal{E}_S \left[ 1 + \frac{M}{2i} (\exp i(\Omega t + \varphi) - \exp -i(\Omega t + \varphi)) \right] \\ &\quad \times \sum_n J_n(\beta) \exp i [(\omega + n \Omega)t + kz + \varphi] + \text{c.c.} \\ E_S &= \frac{1}{2} \mathcal{E}_S \sum_n \left[ J_n(\beta) + \frac{M}{2i} (J_{n-1}(\beta) \exp i\varphi - J_{n+1}(\beta) \exp -i\varphi) \right] \\ &\quad \times \exp \left\{ i [(\omega + n\Omega)t + kz + \varphi] \right\} + \text{c.c.} \end{aligned} \quad (3.71)$$

soit :

$$E_S = \frac{1}{2} \mathcal{E}_S \sum_n K_n(\beta, M, \varphi) \exp \left\{ i [ (\omega + n\Omega)t + kz + \varphi ] \right\} + \text{c.c.} \quad (3.72)$$

De même :

$$E_P = \frac{1}{2} \mathcal{E}_P \sum_n K_n(\beta, M, \varphi) \exp \left\{ i [ (\omega + n\Omega)t + kz + \varphi ] \right\} + \text{c.c.} \quad (3.73)$$

Cette décomposition est tout à fait similaire au cas d'une modulation de phase pure, à condition de remplacer les fonctions de Bessel réelles  $J_n$  par les fonctions complexes  $K_n$ . Le formalisme développé dans la première partie est alors immédiatement applicable en substituant  $K_n$  à  $J_n$ , avec :

$$K_n = K_n(\beta, M, \varphi) = J_n(\beta) - i \frac{M}{2} (J_{n-1}(\beta) \exp i \varphi - J_{n+1}(\beta) \exp -i \varphi) \quad (3.74)$$

Les expressions (3.68), (3.69) deviennent alors :

$$A = \sum_n [ L_n \operatorname{Re}(E_n + F_n) - D_n \operatorname{Im}(E_n + F_n) ] + (\text{termes à } 2 \Omega) \quad (3.75)$$

$$D = - \sum_n [ D_n \operatorname{Re}(E_n - F_n) + L_n \operatorname{Im}(E_n - F_n) ] + (\text{termes à } 2 \Omega) \quad (3.76)$$

où les formes classiques absorption (A) et dispersion (D) sont remplacées par une superposition des deux types de formes de raies, conduisant à une asymétrie des spectres aussi bien en absorption qu'en dispersion.

La simulation sur ordinateur présentée sur la figure 3.4.3 a permis de montrer pour diverses conditions de phase et d'indice de modulation, l'influence d'une modulation d'amplitude sur la symétrie et la position des résonances en détection hétérodyne.

Il convient donc d'être très prudent quant à l'utilisation d'une telle résonance (signal de dispersion) comme signal d'erreur dans une boucle d'asservissement de laser. En particulier, lors de mesures métrologiques, il faudra s'assurer qu'aucune modulation d'amplitude n'est induite par la modulation de phase.

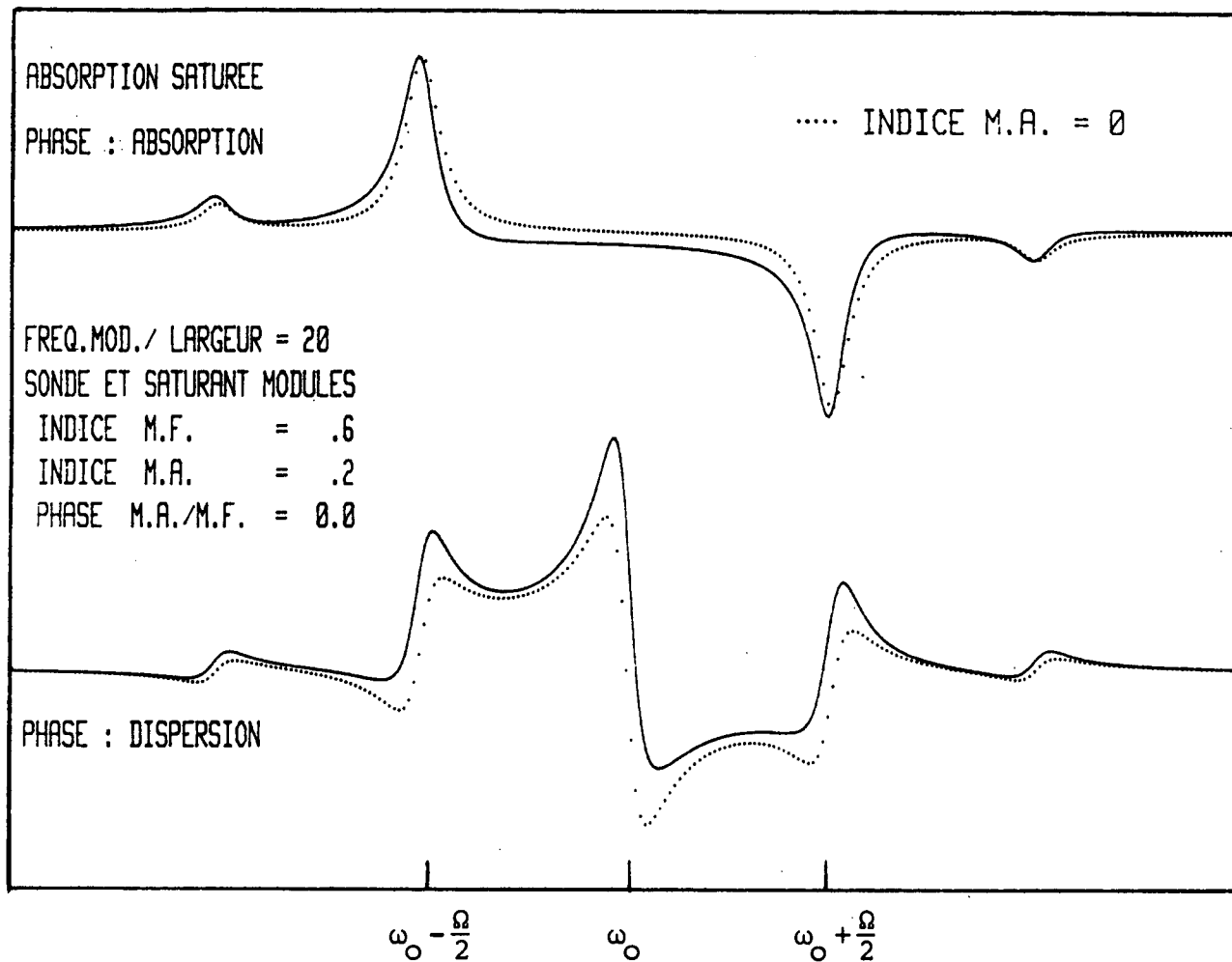


FIGURE 3.4.3

Signaux de saturation en phase et en quadrature détectés à la fréquence  $\Omega$  avec (trait continu) et sans (trait en pointillés) modulation d'amplitude superposée à la modulation de fréquence. Noter le déplacement et l'asymétrie des résonances lorsque l'indice de modulation d'amplitude (M.A.) est non nul. Théorie en champ laser faible.

### 3.4.4 RESULTATS

Nous allons présenter dans ce paragraphe quelques-uns des spectres expérimentaux obtenus en détection hétérodyne (avec  $\Omega \gg \Gamma$ ) et voir comment le formalisme précédent peut en rendre compte.

#### 3.4.4.1 Transition P 39 A<sub>2</sub><sup>3</sup> de <sup>192</sup>OsO<sub>4</sub>

Cette transition, exempte de structure hyperfine ( $I(^{192}\text{Os}) = 0$ ),  $I(^{16}\text{O}) = 0$ ), bien isolée, est tout à fait propice aux études de formes de raies. Les figures 3.4.4 à 3.4.7 présentent les spectres obtenus avec une fréquence de modulation  $\Omega = 89,44$  kHz, un indice de modulation  $\beta \approx 0,8$  et une pression de seulement  $10^{-5}$  Torr dans la grande cuve d'absorption. La largeur à mi-hauteur,  $\Gamma$ , des résonances n'est que de 650 à 700 Hz en champ laser faible. Comme nous l'avons déjà signalé, l'absence de tout élargissement des raies par modulation simplifie l'interprétation des spectres et nous avons pu déterminer ainsi l'élargissement collisionnel pour OsO<sub>4</sub> et SF<sub>6</sub> en extrapolant à intensité laser nulle les largeurs de raies mesurées à différentes pressions (Fig. 3.1.8 et 3.1.7).

##### 3.4.4.1.1 Champ laser faible : P = 2 $\mu$ W

Les expressions (3.68) et (3.69) permettent de calculer la forme de raie théorique en modulation de fréquence pure en utilisant les paramètres expérimentaux  $\Omega$ ,  $\Gamma$ , et  $\beta$ . L'indice de modulation  $\beta = 0,8$  n'apporte de contributions notables qu'aux trois premières résonances, à  $\omega_0$ ,  $\omega_0 \pm \Omega/2$  et  $\omega_0 \pm \Omega$ . La comparaison expérience-théorie présentée sur la figure 3.4.4, a été réalisée en ne retenant que les trois premiers termes ( $J_0$ ,  $J_{\pm 1}$ ,  $J_{\pm 2}$ ) du développement de Fourier du champ modulé en fréquence.

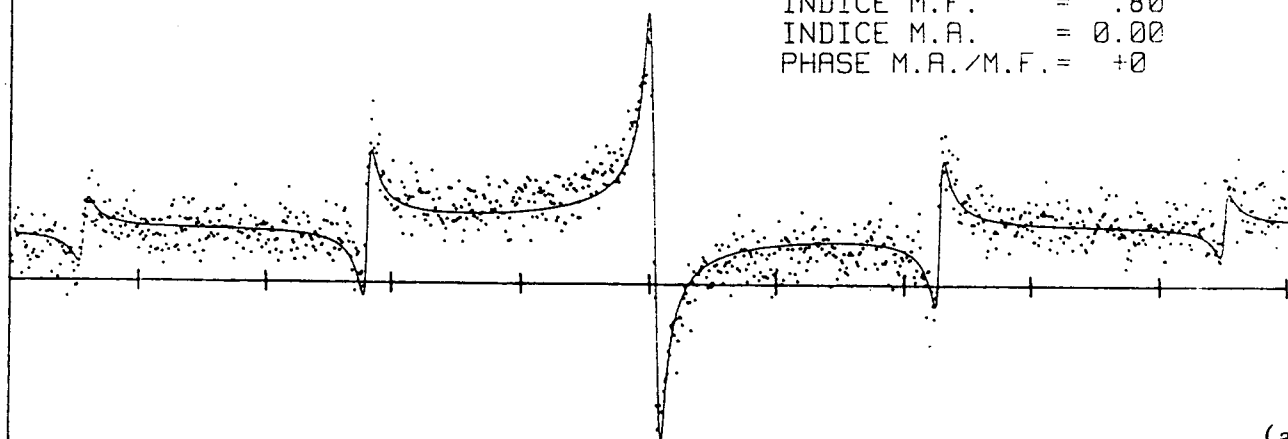
##### 3.4.4.1.2 Champ laser relativement intense : P = 12 $\mu$ W

Si nous augmentons la puissance laser (x 6), il n'est plus possible de rendre compte du spectre expérimental (Fig. 3.4.5.) Un examen détaillé de ce spectre fait apparaître une largeur de raie différente pour chacune des résonances à  $\omega_0$ ,  $\omega_0 \pm \Omega/2$ ,  $\omega_0 \pm \Omega$ .



FR.INIT= 48250.00 kHz FR.FIN= 48450.00 kHz  
MOYENNE APRES 1 BALAYAGE DE DUREE 40 SEC

FREQ.MODUL. = 89.4 kHz  
LARGEUR DE RAIE= .7 kHz  
INDICE M.F. = .80  
INDICE M.A. = 0.00  
PHASE M.A./M.F. = +0

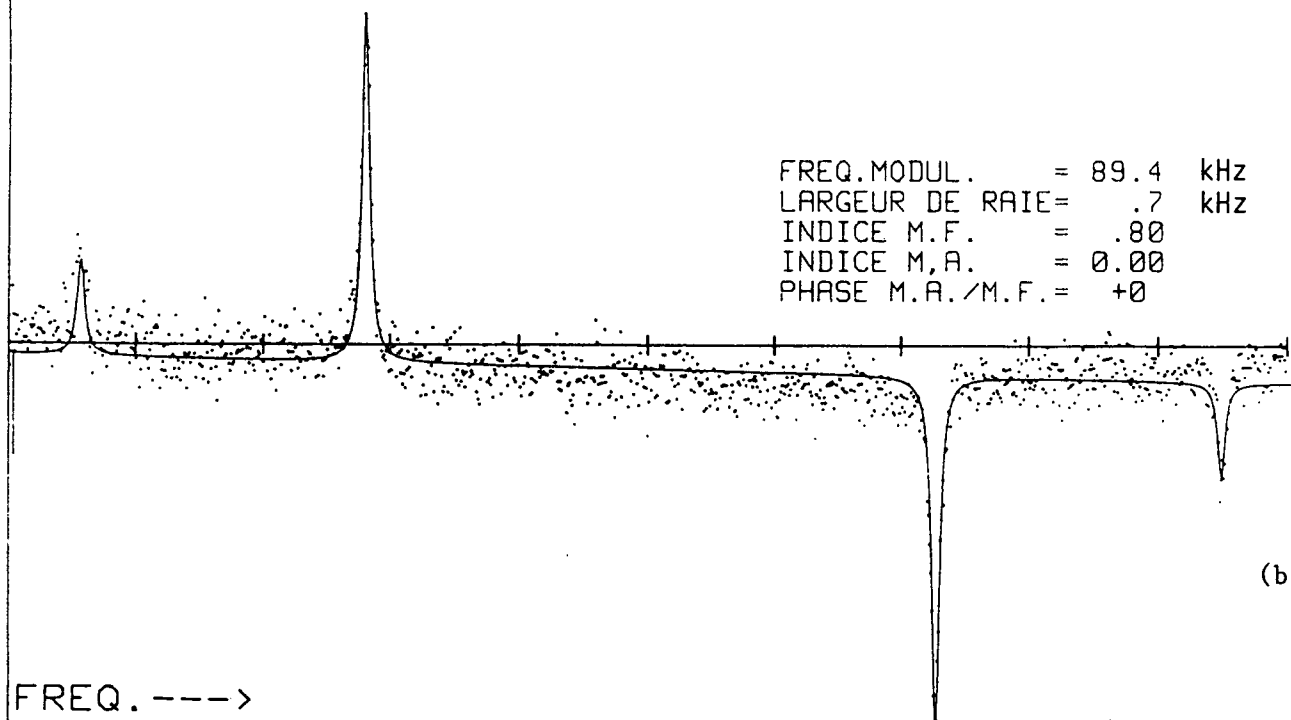


(a)

FREQ.---->  
BALAYAGE DE PAS .20 kHz SUR 200.00 kHz  
NOM: OsO4 P39104 12:JAN:84 18:57:35

FR.INIT= 48250.00 kHz FR.FIN= 48450.00 kHz  
MOYENNE APRES 1 BALAYAGE DE DUREE 40 SEC

FREQ.MODUL. = 89.4 kHz  
LARGEUR DE RAIE= .7 kHz  
INDICE M.F. = .80  
INDICE M.A. = 0.00  
PHASE M.A./M.F. = +0



(b)

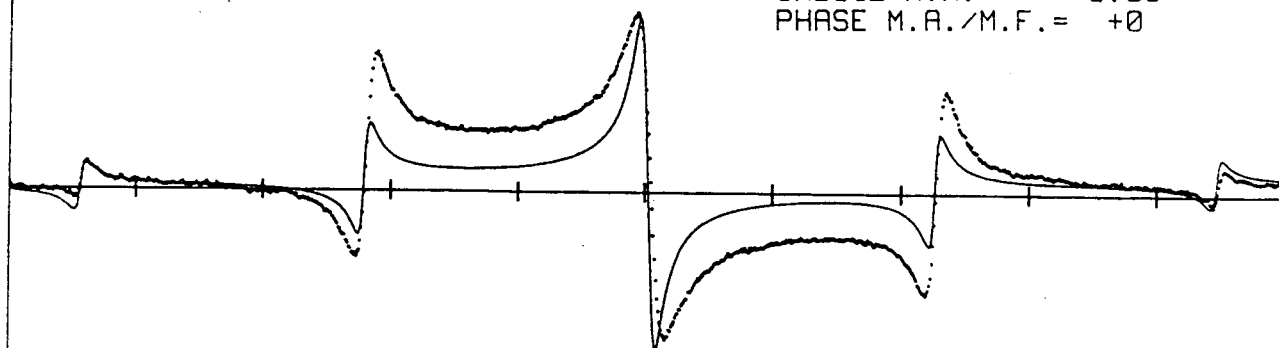
FREQ.---->  
BALAYAGE DE PAS .20 kHz SUR 200.00 kHz  
NOM: OsO4 P39102 12:JAN:84 18:46:21

FIGURE 3.4.4 - Signaux théoriques (traits continus) et expérimentaux (points) en modulation à haute fréquence pour la transition P 39 A<sub>2</sub> de <sup>192</sup>OsO<sub>4</sub>, en champ laser faible (~ 2 μW).

- (a) Dispersion.
- (b) Absorption.

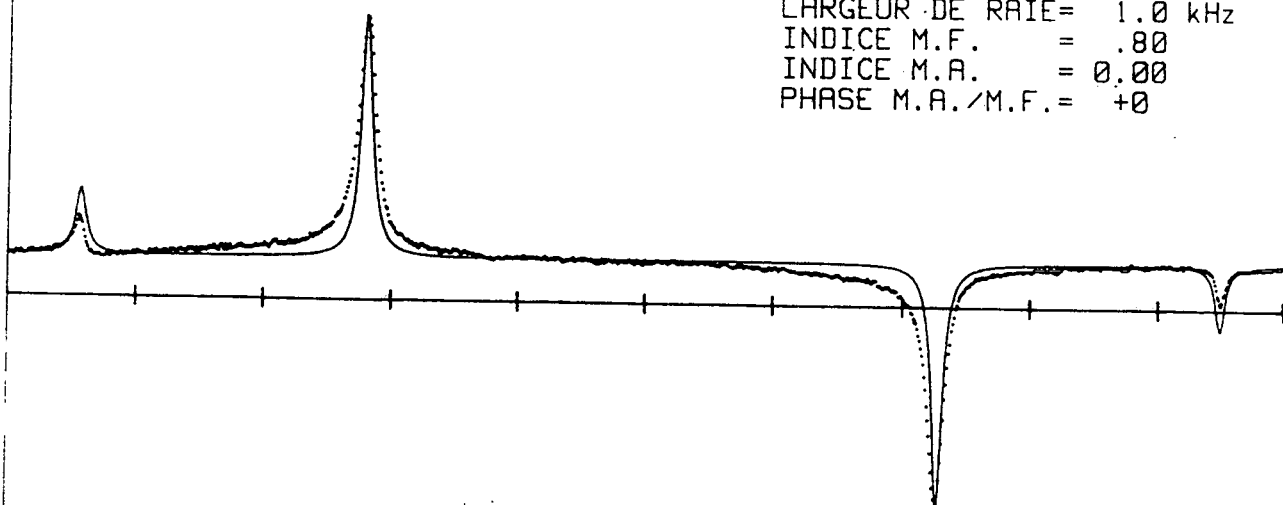
FR.INIT= 48250.00 kHz FR.FIN= 48450.00 kHz  
MOYENNE APRES 1 BALAYAGE DE DUREE 40 SEC

FREQ.MODUL. = 89.4 kHz  
LARGEUR DE RAIE= 1.0 kHz  
INDICE M.F. = .80  
INDICE M.A. = 0.00  
PHASE M.A./M.F. = +0



FR.INIT= 48250.00 kHz FR.FIN= 48450.00 kHz  
MOYENNE APRES 1 BALAYAGE DE DUREE 40 SEC

FREQ.MODUL. = 89.4 kHz  
LARGEUR DE RAIE= 1.0 kHz  
INDICE M.F. = .80  
INDICE M.A. = 0.00  
PHASE M.A./M.F. = +0



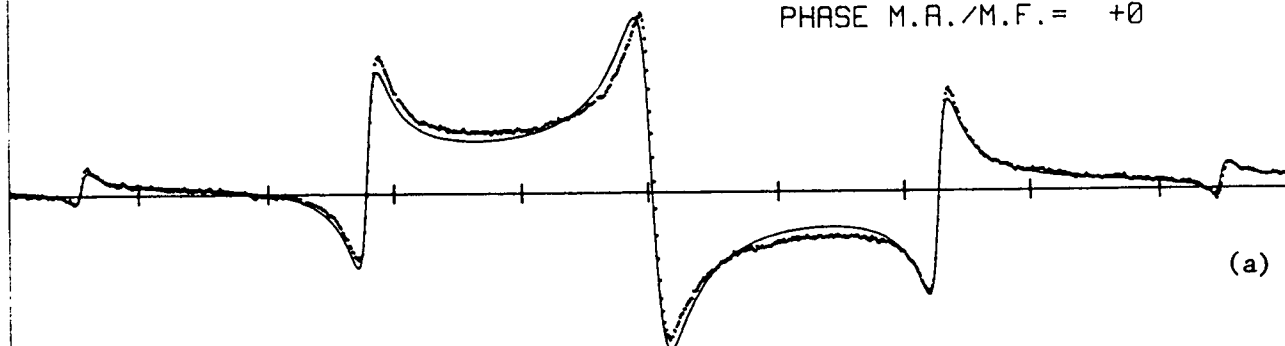
FREQ. ---->  
BALAYAGE DE PAS .20 kHz SUR 200.00 kHz  
NOM: OsO4 P39105 12:JAN:84 19:05:51

FIGURE 3.4.5 - Signaux de saturation, théoriques (trait continu) et expérimentaux (pointillés) pour la raie P39 A<sub>3</sub> de <sup>192</sup>OsO<sub>4</sub> en champ laser intense. Le désaccord théorie-expérience, à la fois sur l'amplitude et la largeur des résonances est une manifestation de la saturation différentielle de chacune des contributions au signal de saturation.

- (a) Dispersion.
- (b) Absorption.

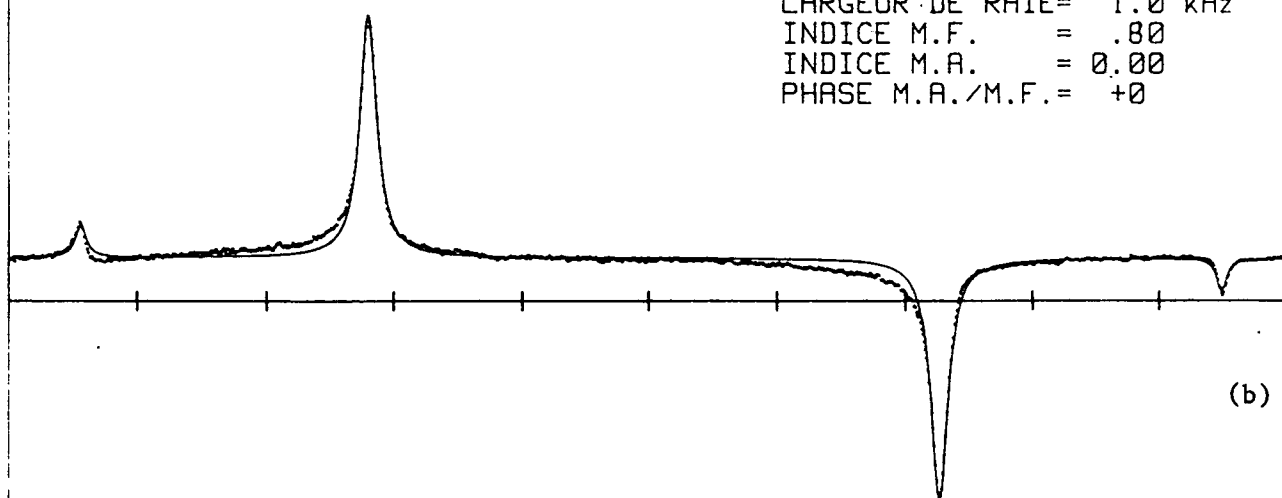
FR.INIT= 48250.00 kHz FR.FIN= 48450.00 kHz  
MOYENNE APRES 1 BALAYAGE DE DUREE 40 SEC

FREQ.MODUL. = 89.4 kHz  
LARGEUR DE RAIE= 1.0 kHz  
INDICE M.F. = .80  
INDICE M.A. = 0.00  
PHASE M.A./M.F.= +0



FR.INIT= 48250.00 kHz FR.FIN= 48450.00 kHz  
MOYENNE APRES 1 BALAYAGE DE DUREE 40 SEC

FREQ.MODUL. = 89.4 kHz  
LARGEUR DE RAIE= 1.0 kHz  
INDICE M.F. = .80  
INDICE M.A. = 0.00  
PHASE M.A./M.F.= +0

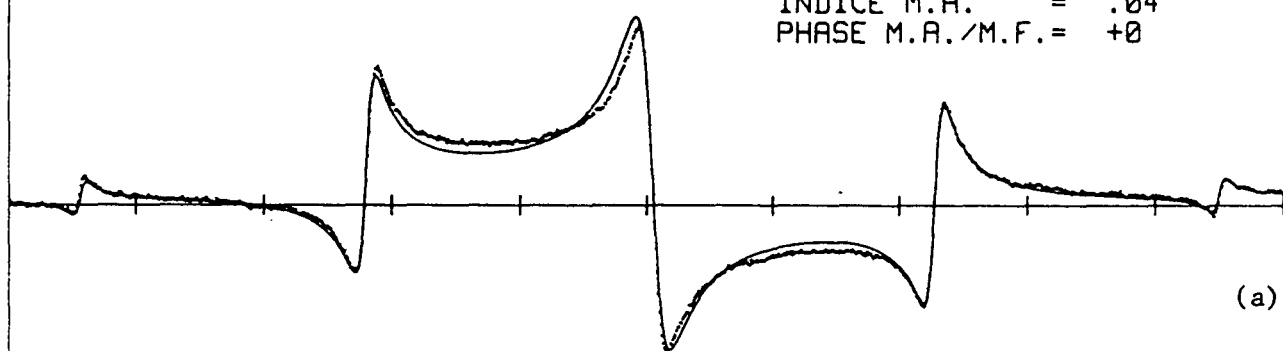


FREQ. --->  
BALAYAGE DE PAS .20 kHz SUR 200.00 kHz  
NOM: OsO4 P39105 12:JAN:84 19:05:51

FIGURE 3.4.6 - Signaux théoriques (trait continu) et expérimentaux (points) en champ laser intense. La courbe théorique est obtenue en affectant une largeur et une intensité effective pour chacune des résonances. Noter cependant le léger déplacement de la résonance centrale sur le spectre de dispersion (a), ainsi que l'asymétrie des résonances d'absorption (b), dûs à une légère modulation d'amplitude. Raie P39  $A_2^3$  de  $^{192}\text{OsO}_4$ .

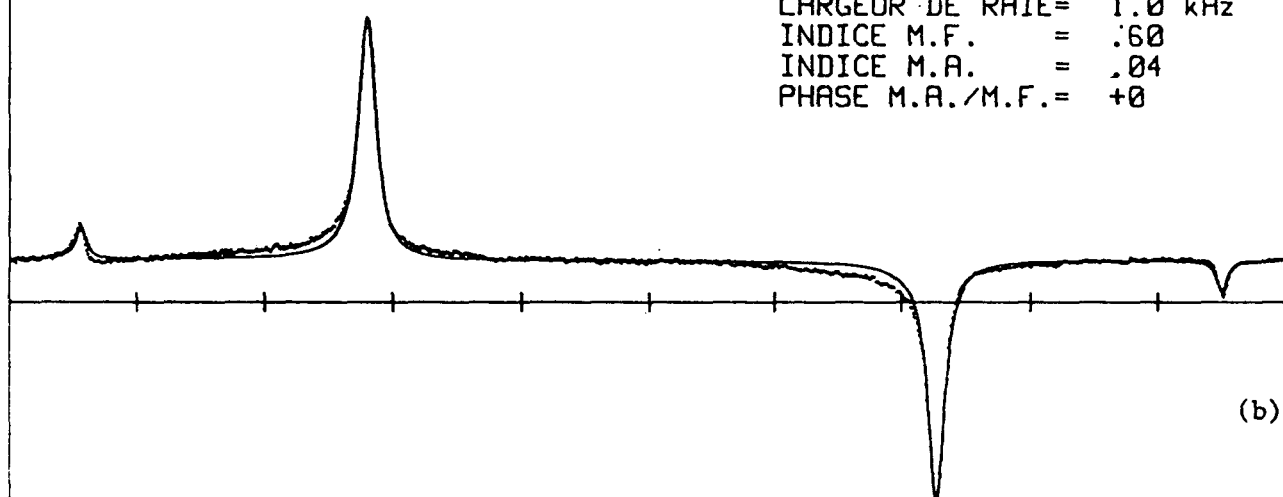
FR.INIT= 48250.00 kHz FR.FIN= 48450.00 kHz  
MOYENNE APRES 1 BALAYAGE DE DUREE. 40 SEC

FREQ.MODUL. = 89.4 kHz  
LARGEUR DE RAIE= 1.0 kHz  
INDICE M.F. = .60  
INDICE M.A. = .04  
PHASE M.A./M.F.= +0



FR.INIT= 48250.00 kHz FR.FIN= 48450.00 kHz  
MOYENNE APRES 1 BALAYAGE DE DUREE 40 SEC

FREQ.MODUL. = 89.4 kHz  
LARGEUR DE RAIE= 1.0 kHz  
INDICE M.F. = .60  
INDICE M.A. = .04  
PHASE M.A./M.F.= +0



FREQ. --->  
BALAYAGE DE PAS .20 kHz SUR 200.00 kHz  
NOM: Os04 P39105 12:JAN:84 19:05:51

FIGURE 3.4.7. (a) et (b) - Signaux théoriques (traits continus) et expérimentaux (points) en champ laser intense. La courbe théorique prend en compte une légère modulation d'amplitude, (d'indice 0,04), superposée à la modulation de fréquence. Elle reproduit correctement le déplacement de la résonance centrale sur la phase de dispersion (a). (Comparer à la figure 3.4.6).  
Raie P39 A<sub>2</sub><sup>3</sup> de <sup>192</sup>OsO<sub>4</sub>.

De même, sur le spectre de dispersion, le facteur deux entre l'amplitude de la courbe de dispersion centrée à  $\omega_0$  et les amplitudes des deux courbes centrées à  $\omega_0 \pm \Omega/2$ , diminue très vite vers une valeur notablement plus faible (de l'ordre de 1,5) dès que l'intensité du laser augmente. En effet, la puissance correspondant à une impulsion  $\pi/2$ , en dessous de laquelle une théorie en champ faible est une bonne approximation, n'est que de  $3,3 \mu\text{W}$  pour  $\text{OsO}_4$ . Or, comme nous l'avons vu, un champ modulé en fréquence (ou en phase) est la superposition de plusieurs champs dont les amplitudes sont directement proportionnelles aux fonctions de Bessel  $J_0(\beta)$ ,  $J_1(\beta)$ ,  $J_{-1}(\beta)$ , ... . A chacun de ces champs peut être associée une impulsion  $\pi/2$ , qui diffère d'une composante de Bessel à l'autre. Nous avons un effet de saturation différentielle des différentes contributions  $J_n J_n^* J_m J_m^*$ , à la forme de raie. En conséquence, à chaque combinaison  $J_n J_n^* J_m J_m^*$ , correspondrait un paramètre de saturation propre, c'est-à-dire pour la résonance associée, une largeur et une intensité propres.

Une théorie en champ fort s'avère ici indispensable.

A l'aide de ce formalisme en champ faible, nous ne pouvons réaliser qu'une approximation en affectant une largeur et une intensité effective pour chacune des résonances. Ceci est très bien illustré sur la résonance centrale du profil de dispersion où la forme de raie réelle est plus étroite au centre et plus large sur les ailes (Fig. 3.4.6).

Les Figures 3.4.6 et 3.4.7 illustrent aussi très bien l'effet de la modulation d'amplitude sur les intensités et les déplacements des diverses résonances. En effet, le spectre de la Figure 3.4.6 (a) fait apparaître un déplacement de plusieurs centaines de Hertz de la composante centrale qui rendrait délicate l'utilisation d'une telle résonance comme référence de fréquence.

#### 3.4.4.2 Transition $Q 43 F_1^8$ de $\text{SF}_6$

Cette transition, de structure hyperfine très serrée ( $\leq 2 \text{ kHz}$ ), nous a permis d'illustrer la forme de raie en présence d'un indice de modulation élevé. Les conditions expérimentales étaient les suivantes :

$$\begin{aligned} P &\approx 1 \times 10^{-5} \text{ Torr} \\ \Gamma &= 2,8 \text{ kHz} && (\text{HWHM}) \\ \Omega &= 43,8 \text{ kHz} \\ P &= 2 \mu\text{W} \end{aligned}$$

Les figures 3.4.8 et 3.4.9 présentent les profils d'absorption et de dispersion pour des indices de modulation respectifs de 0,5 et 1,4. Le fort indice de 1,4 a nécessité une tension de commande de la céramique piézo-électrique élevée ce qui s'est traduit par une modulation d'amplitude non négligeable, et visible sur le bruit du signal d'absorption. Cependant, nous avons considéré l'accord théorie-expérience de la Figure 3.4.9 suffisamment satisfaisant pour ne pas effectuer le long et fastidieux calcul du signal en modulation H.F. avec modulation d'amplitude, incluant les termes en  $J_{\pm 3}(\beta)$ ,  $J_{\pm 4}(\beta)$ .

En conclusion, dans le cas des champs lasers faibles, le formalisme au troisième ordre avec introduction de la modulation d'amplitude permet de rendre compte de façon satisfaisante des formes de raies. Par contre, un formalisme en champ fort devient nécessaire dès que des effets de saturation différentielle apparaissent sur les spectres expérimentaux. Ces effets sont manifestes sur les spectres de la figure 3.4.12(c) donnés à titre d'illustration.

#### 3.4.5 COMPARAISON DE LA SENSIBILITE DES METHODES DE DETECTION BASSE FREQUENCE ( $\Omega < \Gamma$ ) ET HAUTE FREQUENCE ( $\Omega > \Gamma$ )

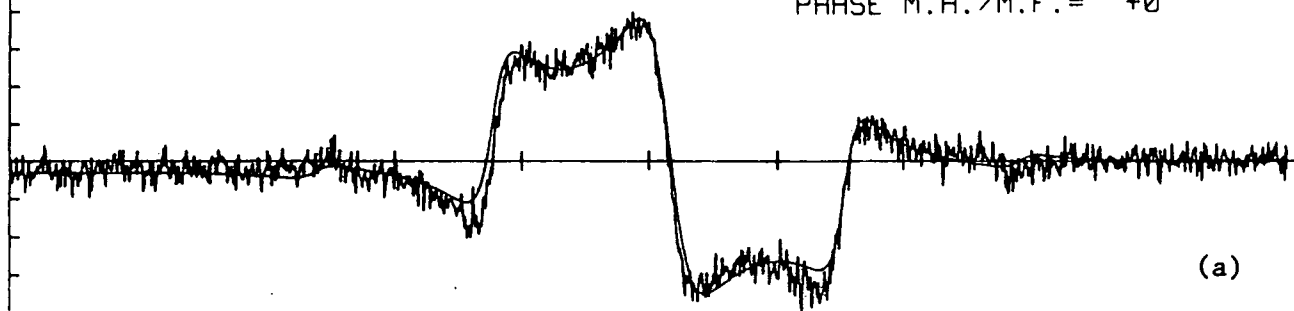
Avant d'effectuer toute comparaison quantitative, il est important de noter quelques restrictions quant à l'utilisation des deux méthodes :

##### 3.4.5.1 Modulation basse fréquence ( $\Omega < \Gamma$ )

L'obtention de raies de plus en plus étroites ( $\Gamma \approx 0,7$  kHz principalement limitée par l'élargissement par temps de vol) nécessite l'emploi de fréquences de modulation de plus en plus basses ( $\Omega \approx$  quelques centaines de Hertz) et d'indices de modulation très faibles ( $\delta \ll \Gamma$ ) afin d'éviter tout élargissement par modulation. Ces basses fréquences sont alors situées dans une région où le bruit d'amplitude des lasers devient prépondérant et il en résulte une dégradation substantielle du rapport signal sur bruit. Par contre, il est facile d'enregistrer des structures qui s'étalent sur plusieurs centaines de kilohertz (R 72 s'étend sur environ 1 MHz) sans être gêné par la fréquence de modulation puisque celle-ci est inférieure à la largeur de raie.

FREQINIT= 1.674024E+7 FREQFIN= 1.658176E+7 Hz  
MOYENNE APRES 1 BALAYAGE DE DUREE 33 S

FREQ.MODUL. = 43.8 kHz  
LARGEUR DE RAIE= 2.8 kHz  
INDICE M.F. = .50  
INDICE M.A. = .04  
PHASE M.A./M.F. = +0



FREQINIT= 1.674021E+7 FREQFIN= 1.658172E+7 Hz  
MOYENNE APRES 1 BALAYAGE DE DUREE 33 S

FREQ.MODUL. = 43.8 kHz  
LARGEUR DE RAIE= 2.8 kHz  
INDICE M.F. = .50  
INDICE M.A. = .04  
PHASE M.A./M.F. = +0

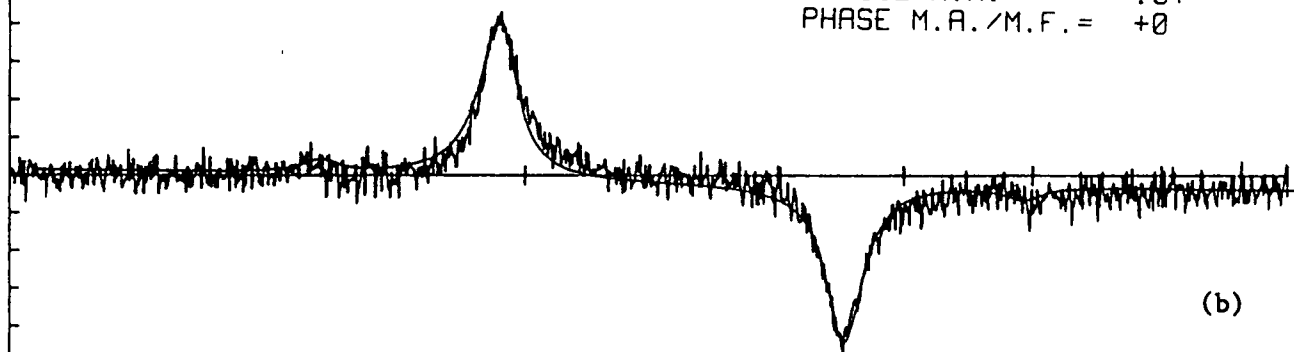
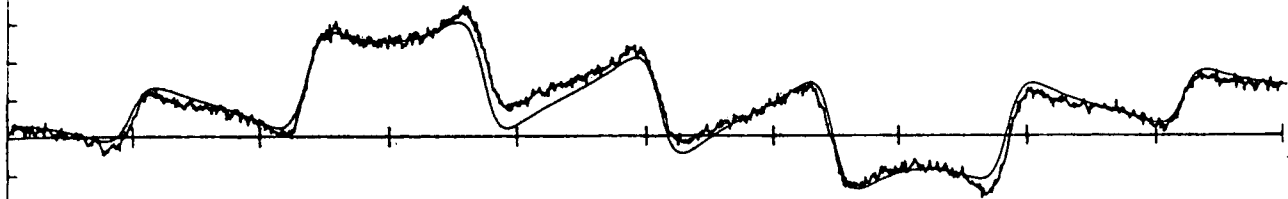


FIGURE 3.4.8 - Signaux théoriques (traits lisses) et expérimentaux en modulation à haute fréquence pour la raie Q43  $F_8$  de  $SF_6$  à faible indice de modulation (0,5) et en champ laser peu intense ( $2 \mu W$ ). La pression dans la cuve est de  $10^{-5}$  Torr et la constante de temps 30 ms.

- (a) Dispersion.
- (b) Absorption.

FREQINIT= 1.673845E+7 FREQFIN= 1.657996E+7 Hz  
MOYENNE APRES 1 BALAYAGE DE DUREE 33 S

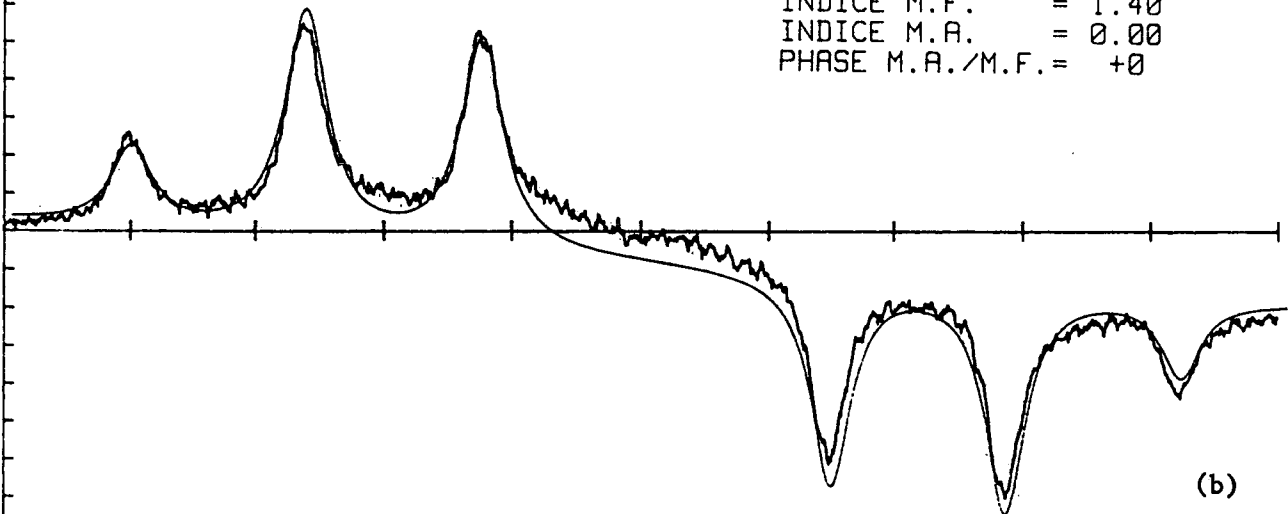
FREQ.MODUL. = 43.8 kHz  
LARGEUR DE RAIE= 3.1 kHz  
INDICE M.F. = 1.40  
INDICE M.A. = 0.00  
PHASE M.A./M.F. = +0



(a)

FREQINIT= 1.673848E+7 FREQFIN= 1.657998E+7 Hz  
MOYENNE APRES 1 BALAYAGE DE DUREE 33 S

FREQ.MODUL. = 43.8 kHz  
LARGEUR DE RAIE= 3.1 kHz  
INDICE M.F. = 1.40  
INDICE M.A. = 0.00  
PHASE M.A./M.F. = +0



(b)

FIGURE 3.4.9 - Signaux de saturation théoriques (traits lisses) et expérimentaux en modulation à haute fréquence pour la raie Q43 F<sub>8</sub> de SF<sub>6</sub>, à fort indice de modulation (1,4). Pression : 10<sup>-5</sup> Torr. L'intensité du laser est de l'ordre de 10 μW et la constante de temps n'est que de 3 ms. Comparer à la figure 3.4.8 .

- (a) Dispersion.
- (b) Absorption.



### 3.4.5.2 Modulation haute fréquence ( $\Omega > \Gamma$ )

Pour bénéficier pleinement de cette méthode, il convient de choisir une fréquence de modulation suffisamment élevée pour se situer dans un régime où le bruit d'amplitude de la source est uniquement limité par le bruit de photons. Dans le cas des lasers à  $\text{CO}_2$ , des fréquences supérieures à 20 kHz sont suffisantes; par contre pour un laser à colorant ou à centres colorés, il est nécessaire d'utiliser des fréquences de plusieurs centaines de kilohertz. Cependant, cette fréquence de modulation doit rester inférieure à la largeur Doppler de la transition puisque ce sont des classes de vitesses non nulles ( $kv_z = \pm n \frac{\Omega}{2}$ ) qui contribuent au signal. Enfin, cette fréquence doit être supérieure à l'étalement des structures moléculaires à étudier, afin d'éviter tout mélange complexe entre les diverses résonances à  $\omega_0 \pm n \frac{\Omega}{2}$  et les structures. Un autre avantage de la modulation haute fréquence est d'éviter tout élargissement par modulation quel que soit l'indice de modulation. Néanmoins un fort indice de modulation introduira, comme nous l'avons vu, une modulation d'amplitude avec tous ses inconvénients (symétrie et position des résonances).

Enfin, les spectres en dispersion sont très propices à une bonne stabilisation en fréquence d'un laser sur une résonance moléculaire (ou sur un Fabry-Perot), puisque le signal d'erreur présente à la fois un signe adéquat sur tout l'intervalle  $(-\frac{\Omega}{2}, +\frac{\Omega}{2})$ , et une très forte pente au voisinage de la résonance ( $\omega = \omega_0$ ). Cet avantage est très utile pour les lasers bruyants où les grandes excursions de fréquences peuvent être corrigées sans décrochage de l'asservissement.

Pour illustrer le gain de sensibilité en modulation haute fréquence, nous avons mesuré le bruit en sortie de détection synchrone pour deux fréquences très différentes,  $\Omega = 1 \text{ kHz}$  et  $\Omega = 90 \text{ kHz}$ . Nous nous sommes limités à la gamme de puissance 0 - 10  $\mu\text{W}$  qui correspond aux puissances utilisées dans l'enregistrement des spectres à ultra-haute résolution. Nous désignerons par  $\sigma$  le gain (en V) de la détection synchrone et  $S_e$ ,  $S_s$  les signaux d'entrée et de sortie de cette détection synchrone :

$$S_e = \frac{1}{8} \sigma S_s \quad (3.77)$$

Le bruit R.M.S., dans une bande passante  $\Delta f$ , ramené à l'entrée du préamplificateur s'écrit alors :

$$B = \frac{1}{G} \left( \frac{1}{8} \sigma S_s \right) \sqrt{4\tau} \sqrt{\Delta f} \quad (\text{Volt}) \quad (3.78)$$

où  $G$  représente le gain du préamplificateur et  $\tau$  la constante de temps utilisée à la détection synchrone.

Les valeurs de  $B$  ont été portées dans le tableau 3.8 et sont tracées sur la figure 3.4.10 .

A partir de la courbe d'étalonnage de la figure 2.3.6 donnant la tension aux bornes du détecteur,  $V$ , en fonction de la puissance optique incidente  $P_L$ , on déduit le rendement  $\rho$  du détecteur

$$\rho = \frac{V}{R P_L} \quad (3.79)$$

où  $R$  est la résistance de charge du détecteur. Les rendements des détecteurs sur le montage de la boucle de référence et sur le montage de la grande cuve sont sensiblement identiques et valent :

$$\rho = 0,83 \text{ A/W} \quad \text{pour} \quad R = 1,7 \text{ k}\Omega \quad (3.80)$$

On en déduit le courant de bruit de photons dans la bande passante  $\Delta f$  :

$$i = 0,5 \times 10^{-9} \sqrt{P_L} \sqrt{\Delta f} \quad (3.81)$$

et la tension de bruit de photons :

$$V = R i = 0,84 \times 10^{-6} \sqrt{P_L} \sqrt{\Delta f}, \quad (3.82)$$

apparaissant aux bornes des détecteurs ou du préamplificateur<sup>(\*)</sup>.

Ces valeurs du bruit de photons pour différentes puissances  $P_L$  sont reportées également sur la figure 3.4.10.

---

(\*) En fait, dans l'étude des différentes sources de bruit du Chapitre 2, nous avons utilisé pour nos détecteurs un rendement  $\rho = 4 \text{ A/W}$  donné par le constructeur. Ce rendement s'est montré notablement plus faible dans nos expériences ( $\rho = 0,83 \text{ A/W}$ ).

$\Omega = 1 \text{ kHz}$				$\Omega = 90 \text{ kHz}$			Bruit de photons	
Puissance sur le détecteur W	Gain dét. sync. mV	Bruit R.M.S. dét. sync. mV $\tau = 30 \text{ ms}$	Bruit R.M.S. à l'entrée du préamplificateur nV/ $\sqrt{\text{Hz}}$	Gain dét. sync. mV	Bruit R.M.S. dét. sync. mV $\tau = 30 \text{ ms}$	Bruit R.M.S. à l'entrée du préamplificateur nV/ $\sqrt{\text{Hz}}$	Bruit R.M.S. à l'entrée du préamplificateur nV/ $\sqrt{\text{Hz}}$	
0,15	0,5	260	5,8				0,32	
0,3	1	133	6	1	47	2	0,46	
0,65	2	66	5,9	1	66	2,8	0,68	
1	2	66	5,9	1	66	2,8	0,84	
1,3	2	114	11,2	1	76	3,2	1,95	
2,1	5	66	16,9				1,22	
3,2	5	76	20,4	2	38	3,2	1,5	
7,5	5	100	38,5				2,3	

TABLEAU 3.8

COMPARAISON DES NIVEAUX DE BRUIT EN DETECTION A BASSE FREQUENCE ( $\Omega = 1 \text{ kHz}$ ) ET A HAUTE FREQUENCE ( $\Omega = 90 \text{ kHz}$ )

# DETECTIVITE DU SPECTROMETRE

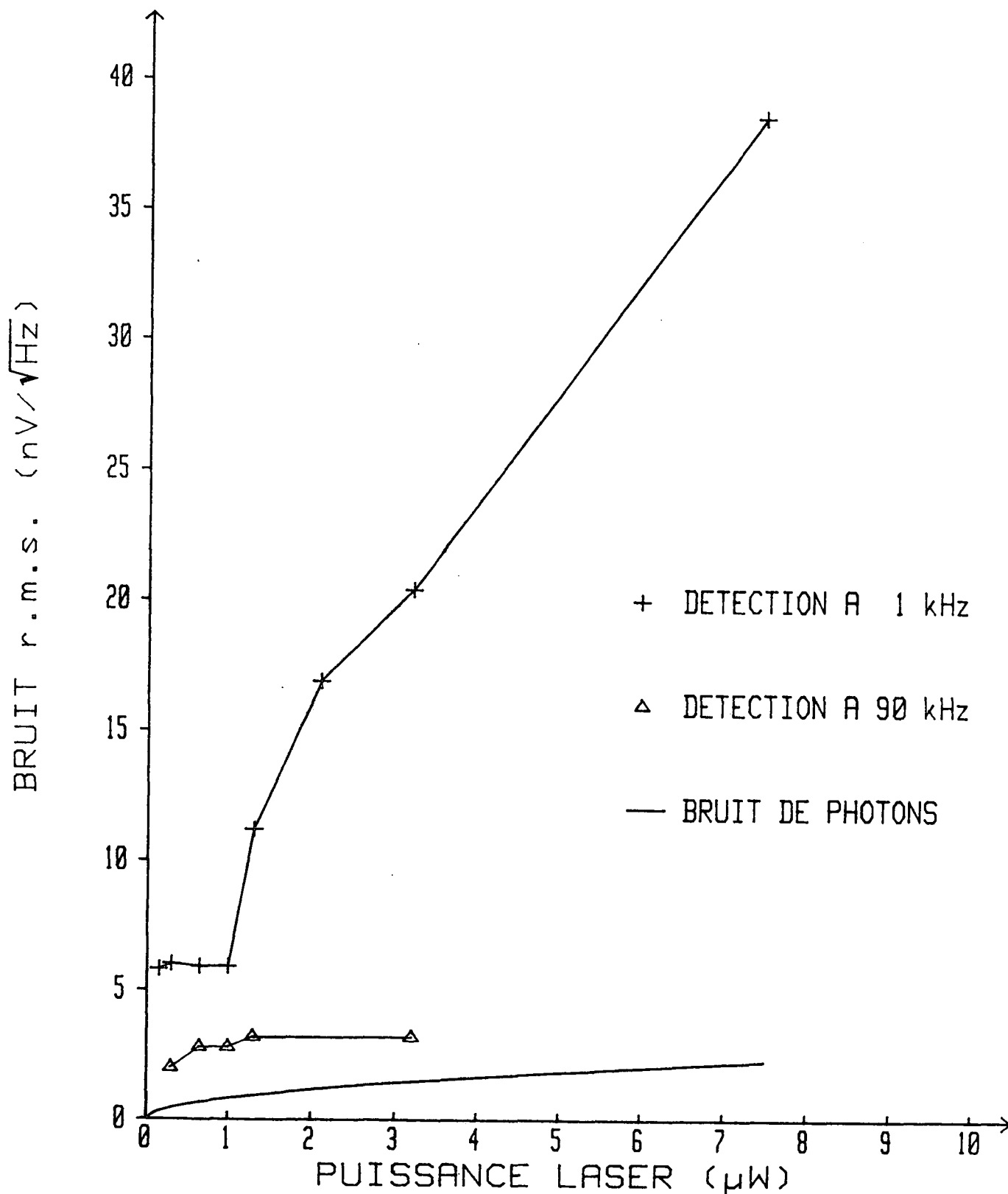


FIGURE 3.4.10 - Bruit R.M.S. à l'entrée du préamplificateur en fonction de la puissance laser arrivant sur le détecteur de la grande cuve d'absorption, à faible éclairement ( $\leq 10 \mu W$ ). Dans les conditions d'utilisation du spectromètre à la plus haute résolution ( $P \approx 1 \mu W$ ), la détectivité, à la fréquence de modulation de 90 kHz, est à un facteur 2 ou 3 de la limite imposée par le bruit de photons.

### Discussion

- Dans le cas de la détection à 1 kHz, nous distinguons deux régimes très différents en fonction de la puissance laser, que nous interprétons ainsi : jusqu'à  $1 \mu\text{W}$ , le bruit de l'ensemble détecteur-préamplificateur est prépondérant; il ne dépend pas de la puissance laser et correspond, à un facteur deux près, à la valeur théorique ( $2,5 \sqrt{\Delta f}$  (nV)) pour cette fréquence de 1 kHz. Au-delà de  $1 \mu\text{W}$ , le bruit d'amplitude du laser à 1 kHz devient prépondérant et augmente très rapidement avec la puissance laser.

- Dans le cas de la détection à 90 kHz, pour des puissances s'élevant jusqu'à  $4 \mu\text{W}$ , nous n'observons pas de bruit d'amplitude du laser. Le bruit résiduel du système préamplificateur-détecteur ( $B \approx 2 \sqrt{\Delta f}$  (nV)) vient s'ajouter à la contribution du bruit de photons sensiblement du même ordre de grandeur.

La technique de détection hétérodyne haute fréquence présente un niveau de bruit au moins trois fois plus faible que celui de la détection à la fréquence de 1 kHz. Elle nous permet d'approcher à un facteur 2-3 près la limite théorique du bruit de photons.

#### 3.4.6 LA DETECTIVITE ULTIME DU SPECTROMETRE DE SATURATION SOUS SA FORME ACTUELLE

La tension de bruit,  $v_b$ , à l'entrée du préamplificateur, est de l'ordre de  $3 \sqrt{\Delta f}$  (nV) pour des puissances inférieures à  $5 \mu\text{W}$ . La puissance optique qui est équivalente à cette tension de bruit s'écrit :

$$P_b = \frac{v_b^2}{\rho R} = 2 \times 10^{-12} \sqrt{\Delta f} \quad (\text{W}) \quad (3.83)$$

Cette puissance caractérise la détectivité ultime du spectromètre de saturation sous sa forme actuelle, dans la gamme de puissances lasers de 0 à  $5 \mu\text{W}$ . Cette détectivité est à un facteur sensiblement 3 du bruit de photons. Cette gamme de puissance est précisément celle qui correspond à une impulsion  $\pi/2$  pour les molécules  $\text{SF}_6$  ( $1 \mu\text{W}$ ) ou  $\text{OsO}_4$  ( $3,3 \mu\text{W}$ ). Pour la molécule  $\text{SF}_6$ , avec une puissance laser de 1 à  $2 \mu\text{W}$ , la figure 3.1.1 indique qu'un rapport signal sur bruit de 5 à 10 dans une bande passante de 1 Hz est obtenu pour chaque transition hyperfine de la raie  $R(28)\text{A}_2^0$ , à une pression de  $10^{-5}$  Torr dans la cuve.

Ainsi chaque composante hyperfine correspond à une puissance absorbée de l'ordre de  $10^{-11}$  W. Le contraste de chaque raie de saturation est donc dans la gamme des  $10^{-5}$ , à  $1 \mu\text{W}$  de puissance et à  $10^{-5}$  Torr. A l'optimum d'intensité (impulsion  $\pi/2$ ), le signal de franges de Ramsey attendu, avec ce montage en cuve est au mieux de l'ordre de 1% du signal de saturation observé, si l'on suppose une efficacité d'excitation de chaque molécule de 1. En effet, seulement quelques % des molécules contribuant au signal de saturation croisent les trois zones de champ pour les franges de Ramsey et un autre facteur 3 provient du rapport des longueurs d'absorption : 18 m pour les franges, et 54 m pour le signal de saturation. De plus, comme nous le montrerons au Chapitre 4, la distribution des vitesses de traversée des faisceaux ( $v_x$ ) et la dimension  $y$  transverse viennent notablement diminuer l'efficacité d'excitation de chaque molécule.

Il est donc clair que le rapport signal sur bruit obtenu avec la molécule  $\text{SF}_6$  ne permet pas, dans les conditions actuelles, l'observation des franges. Il manque un facteur sensiblement 50. Le signal de franges est très nettement en dessous du bruit de photons dans cette gamme de puissance, de sorte qu'une autre technique de détection (détection hétérodyne avec un oscillateur local beaucoup plus intense par exemple) serait nécessaire. De même, un moyen de peupler le niveau de départ beaucoup plus efficacement (refroidissement, jet supersonique, ... voir le Chapitre 4) serait également souhaitable.

Rappelons qu'une molécule sur  $10^5$  à  $10^6$  participe à une transition hyperfine donnée, à température ambiante (fonction de partition du paragraphe 3.3.3).

La situation (tout aussi grave pour la molécule  $\text{OsO}_4$ ) est plus favorable pour l'ammoniac, pour laquelle l'impulsion  $\pi/2$  se situe à 13-14  $\mu\text{Watt}$ , et les franges attendues sont plus larges. Une pression plus élevée dans la cuve est alors possible. Au voisinage de l'impulsion  $\pi/2$ , nous obtenons un rapport signal sur bruit de 50 dans une bande passante de 1 Hz pour la raie a.s.R(2,0) à une fréquence de modulation de 750 Hz et pour une pression de  $2 \times 10^{-5}$  Torr dans la grande cuve.

Cependant, ces avantages ne se sont pas avérés suffisants pour observer les franges, car il ne nous a pas été possible de trouver une raie de référence de suffisamment bonne qualité de façon à stabiliser la fréquence du laser de référence au niveau de la dizaine de Hz, sur la raie 10R(42) de  $\text{CO}_2$ .

### Remarque

La comparaison des méthodes de détection à basse fréquence ou à haute fréquence de modulation ne saurait être complète sans l'étude du comportement du signal, dans les deux situations. Pour cela, revenons à l'expression (3.59) :

$$S(n, n', m, m') = 2 \operatorname{Re} J_m(\beta) J_{m'}^*(\beta) J_n(\beta) J_{n'}^*(\beta) \\ \times \frac{C_\alpha}{\gamma_\alpha + i(n - n')\Omega} \times \exp \left[ i \left\{ (m - m')\Omega + (n - n')\Omega \right\} t \right] \\ \times \frac{1}{\gamma - i \left[ (\omega - \omega_0) + (2n' - n + m')\Omega/2 \right]}$$

Dans l'étude du paragraphe 3.4.2, nous avons négligé les contributions provenant des valeurs  $n \neq n'$  car elles étaient insignifiantes lorsque  $\Omega \gg \gamma$ . Par contre lorsque  $\Omega$  et  $\gamma$  sont du même ordre de grandeur, toutes les combinaisons où  $n \neq n'$  apportent une contribution au signal et par conséquent viennent renforcer l'amplitude de celui-ci. Cet effet a pour conséquence de venir atténuer, au niveau du rapport signal sur bruit, le gain apporté par la réduction du bruit d'amplitude en modulation haute fréquence.

#### 3.4.6.1 D'autres spectres en modulation haute fréquence

Pour illustrer le très bon rapport signal sur bruit que l'on peut obtenir avec cette technique de modulation à haute fréquence, nous donnons ci-dessous quelques exemples de spectres de  $SF_6$  enregistrés à très haute résolution et leurs homologues où la fréquence de modulation est très petite devant la largeur de raie. La fréquence de modulation choisie est supérieure à l'étalement en fréquence de la structure hyperfine des transitions observées (Fig. 3.4.11 et 3.4.12).

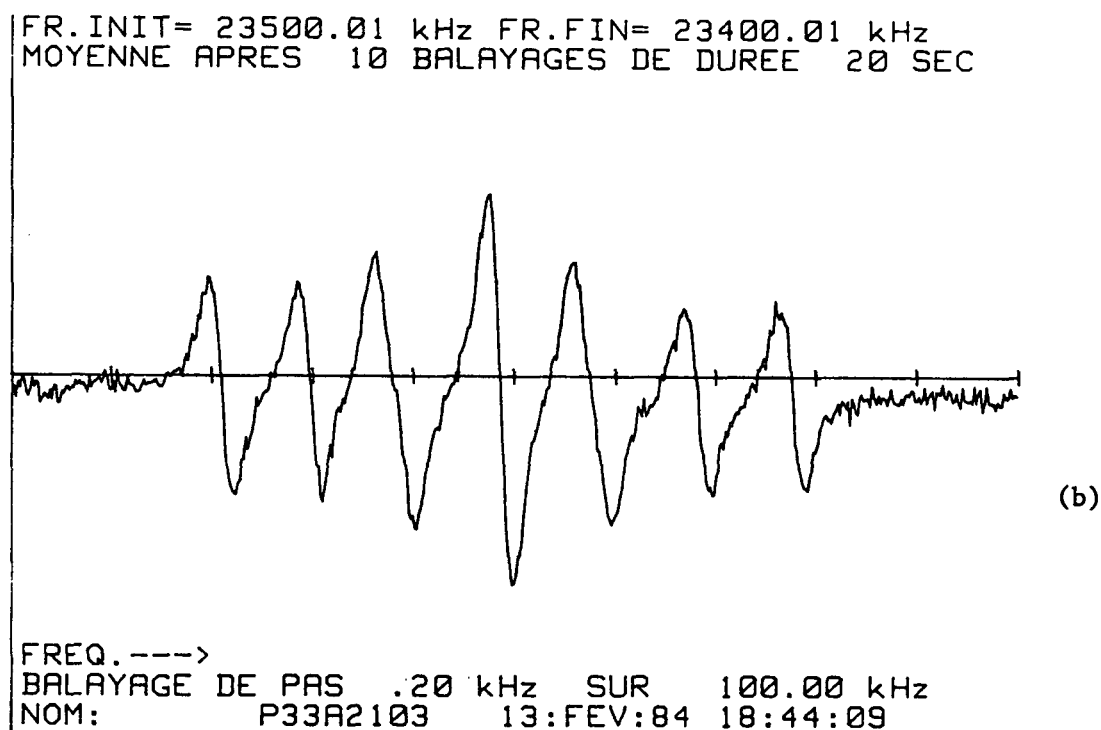
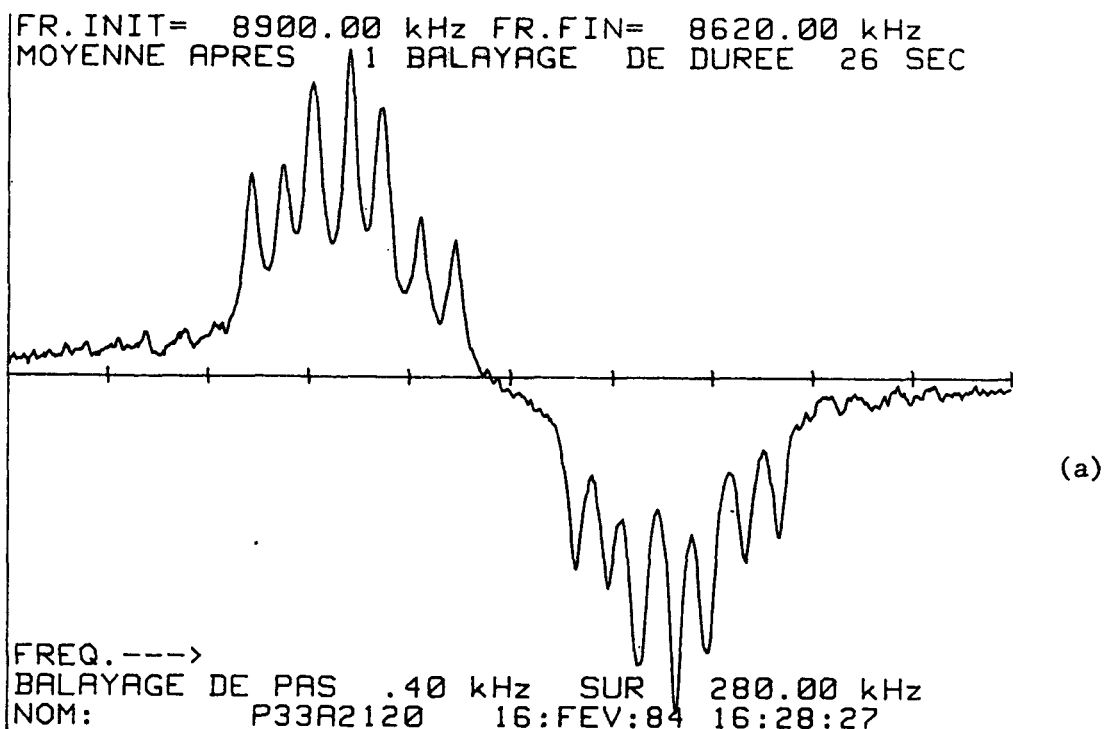


FIGURE 3.4.11 - Spectres en modulation à haute fréquence, (a), ( $\Omega = 90,1$  kHz,  $\tau = 30$  ms, un seul balayage,  $P_L = 14 \mu W$ ) et à basse fréquence (b), ( $\Omega = 1$  kHz,  $\tau = 30$  ms, 10 balayages) de la transition  $P33 A_2^1$  de  $SF_6$ . Ces spectres illustrent :

- (1) la nécessité de choisir une fréquence de modulation soit très supérieure, soit très inférieure à l'étalement en fréquence de la structure hyperfine des raies;
- (2) le gain en rapport signal sur bruit, apporté par la technique de modulation à haute fréquence.



FIGURE 3.4.12 (a) (b) et (c).

- (a) Structure superhyperfine de la raie  $R(66)A_1^0F_1^0F_2^0A_2^0$  de la bande  $\nu_3$  de  $SF_6$  enregistrée par détection hétérodyne à haute fréquence (95 kHz). On a fait la moyenne de 10 balayages de durée 37 secondes avec une constante de temps de 30 ms. La pression de  $SF_6$  n'est que de  $3.10^{-5}$  Torr. (Seules les composantes centrées à  $-\Omega/2$  de la fréquence de résonance sont représentées).
- (b) Même raie détectée à  $\Omega \approx 1$  kHz en un seul balayage de durée 15 minutes et avec une constante de temps de une seconde.
- (c) Signaux de saturation obtenus par modulation à haute fréquence (40 kHz) de la céramique piézoélectrique du laser de balayage :  $(C_1)$  signal en phase;  $(C_2)$  signal en quadrature. Le laser de référence est asservi sur la raie  $Q(38)E^0$  de  $SF_6$  et le deuxième laser, verrouillé en phase sur le premier, est balayé en fréquence autour du centre de la raie  $Q(43)F_1^8$  à 16,66 MHz de la précédente ( $\sim 15,86$  kHz par division). La pression de  $SF_6$  dans la grande cuve est d'environ  $10^{-4}$  Torr et la constante de temps de la détection synchrone 1 ms.

MOYENNE APRES 10 BALAYAGES DE DUREE 37 S

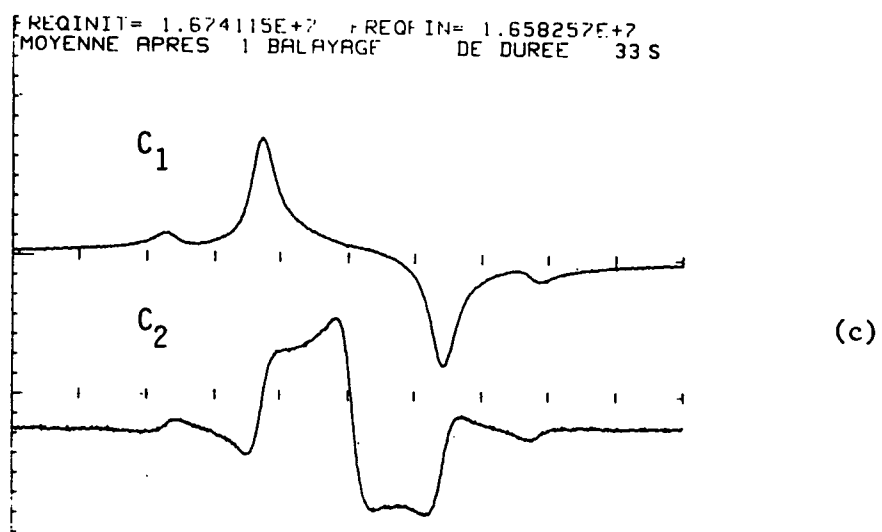
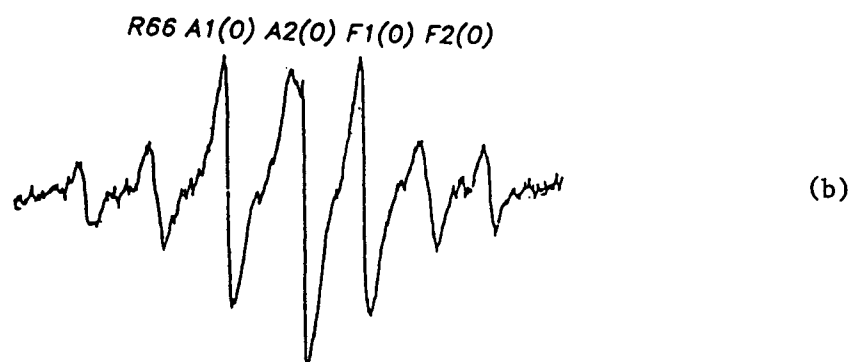
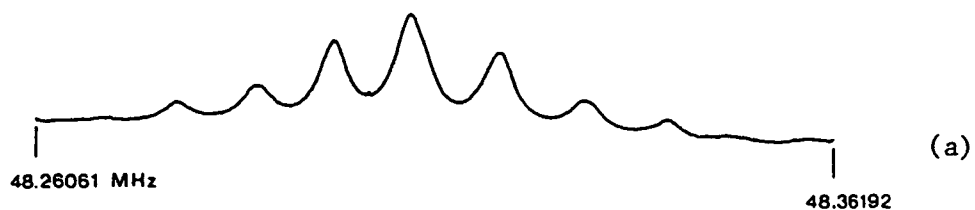


FIGURE 3.4.12

### 3.4.7 UNE TECHNIQUE POUR AMELIORER LA SENSIBILITE EN SPECTROSCOPIE DE SATURATION : L'UTILISATION DE PLUSIEURS CLASSES DE VITESSES [ 124-127 ]

#### 3.4.7.1 Principe

Cette technique, récemment démontrée au laboratoire par G. CAMY avec un laser à  $\text{Ar}^+$  et la molécule d'iode [ 127 ], repose sur la constatation suivante : en spectroscopie de saturation usuelle, le gain en résolution par rapport à la largeur Doppler ( $\Delta\omega_D$ ) provient de la sélection des molécules de vitesse  $v_z$  sensiblement nulle, à la largeur de raie  $2\gamma$  près. En conséquence, seule une très faible fraction des molécules, de l'ordre de  $\frac{2\gamma}{\Delta\omega_D}$  contribue au signal de saturation. L'idée, initialement proposée dans les références [ 124-126 ], consiste alors à tenter d'améliorer le rapport signal sur bruit en faisant contribuer au signal, non seulement la classe  $v_z = 0$ , mais aussi d'autres classes de vitesses.

Avec un laser monomode continu, nous commençons par réaliser un peigne de fréquences optiques centrées autour de la fréquence  $\frac{\omega_L}{2\pi}$  du faisceau laser. Ce peigne, dont les composantes adjacentes sont distantes de  $\Omega'$ , peut être obtenu par modulation de phase, de fréquence ou d'amplitude. Dans le cas d'une modulation de fréquence ou de phase, l'expression générale du signal en champ faible développée au paragraphe précédent, formule (3.59), indique qu'il apparaîtra un signal continu sur le détecteur pour toutes les combinaisons  $m-m'+n-n' = 0$ , associées aux facteurs

$$\text{Re } J_m(\beta) J_{m'}^*(\beta) J_n(\beta) J_{n'}^*(\beta) \frac{1}{\gamma + i(n-n')\Omega'} \frac{1}{\gamma - i[(\omega - \omega_0) + (2n' - n + m')\Omega'/2]} \quad (3.84)$$

Si l'indice de modulation  $\beta$  est suffisamment élevé, il est alors évident que les fonctions de Bessel d'ordre élevé seront mises à contribution. Si, de plus,  $\Omega' \gg \gamma$ , seules les contributions  $n = n'$  (et donc  $m = m'$ ) subsistent. Le signal continu apparaît comme un ensemble de résonances de saturation centré à  $\omega = \omega_0$  et présentant un intervalle  $\frac{\Omega'}{2}$  entre résonances. En particulier, le signal à résonance ( $\omega = \omega_0$ ) présente clairement des contributions de classes de vitesses  $kv_z = \pm n \Omega'$  non nulles, avec  $m = -n$ , pour toutes valeurs de  $n$ .

Il est alors intéressant d'utiliser un indice de modulation très élevé

de façon à couvrir toute la largeur Doppler de la transition avec le peigne des fréquences optiques. En pratique, dans la majorité des cas, la présence de raies voisines impose une limite supérieure à l'étalement de ce peigne.

Pour simplifier la discussion, nous nous sommes limités à la description du signal continu ou (ce qui est équivalent) du signal modulé en fréquence à une fréquence  $\Omega$  très faible devant la largeur de raie  $2\gamma$ . Un raisonnement tout à fait similaire peut être développé dans le cas où l'on effectue une détection hétérodyne à une fréquence  $\Omega$  grande devant la largeur de raie. On combine alors les avantages de l'utilisation de plusieurs classes de vitesses et de la détection à haute fréquence.

### 3.4.7.2 Résultats

#### 3.4.7.2.1 Détection à basse fréquence ( $\Omega = 1,5$ kHz)

La figure 3.4.13(a) présente la raie de saturation  $Q(43)F_1^8$  de  $SF_6$  à une fréquence de modulation  $\Omega = 1,5$  kHz et une pression de  $1,2 \times 10^{-4}$  Torr (résolution moyenne). La largeur de raie (10,5 kHz pic-pic) est dominée par l'élargissement par saturation :  $P_{laser} \approx 70 \mu W$ .

La figure 3.4.13(b) présente la même raie, toutes conditions égales par ailleurs, lorsqu'on applique une modulation de fréquence supplémentaire ( $\Omega' = 56$  kHz). L'indice de modulation choisi  $\beta' = 1,4$  est tel que  $J_0 \approx J_1$ . Le signal de la composante centrale augmente notablement, ainsi que le rapport signal sur bruit, alors que l'élargissement par saturation diminue (largeur pic à pic de 8,8 kHz) puisque l'intensité du faisceau est répartie sur l'ensemble des bandes latérales.

L'expérience précédente est répétée sur la figure 3.4.13(c) et 3.4.13(d), dans des conditions de champ laser plus faible :  $P_L = 23 \mu W$ . Cette fois, le signal de la composante centrale n'augmente pas, car les contributions de toutes les classes de vitesses non nulles ne sont pas suffisantes pour contrebalancer le fait que la puissance laser est répartie sur l'ensemble des bandes latérales. La réponse (non linéaire !) du système est proportionnelle à  $P_L^2$  en champ faible. La largeur de raie est en conséquence notablement plus faible sur la figure 3.4.13(d) (7,6 kHz) que sur la figure 3.4.13(c) (8,7 kHz).

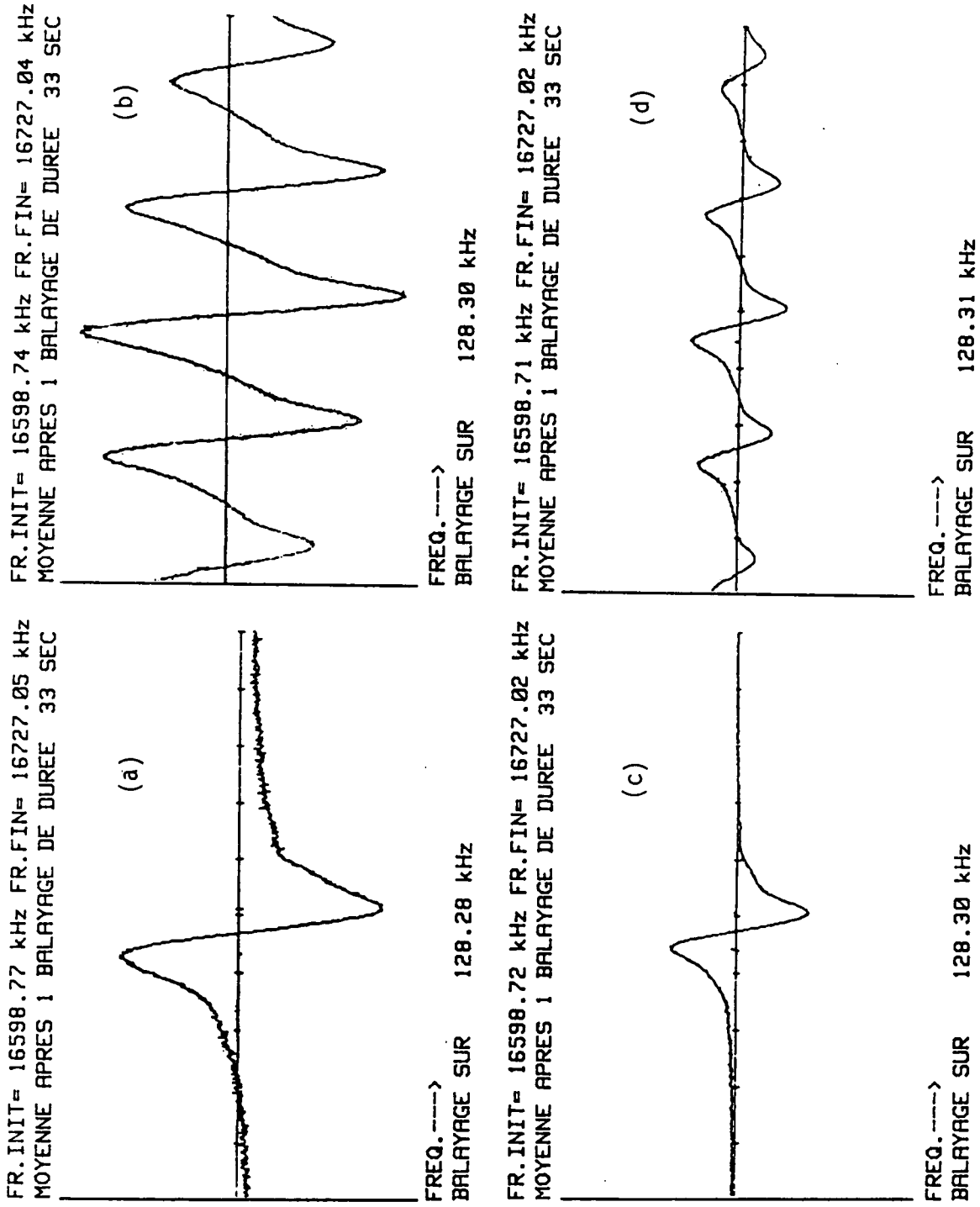


FIGURE 3.4.13

(a) (b) (c) (d)

FIGURE 3.4.13 - Raie  $Q(43)F_1^8$  de la bande  $\nu_3$  de  $SF_6$  à résolution moyenne : pression  $1,2 \times 10^{-4}$  Torr; fréquence de modulation  $\Omega = 1,5$  kHz; constante de temps : 30 ms.

(a) et (b) Puissance laser 70  $\mu W$ .

(a) Sans peigne de fréquence supplémentaire. Largeur de raie : 10,5 kHz (pic à pic).

(b) Avec peigne de fréquences ( $\Omega' = 56$  kHz) d'indice  $\beta' = 1,4$ .

L'amplitude de la résonance centrale augmente et la largeur de raie diminue (8,8 kHz pic à pic).

(c) et (d) Même expérience en champ laser faible (23  $\mu W$ ).

(c) Sans peigne de fréquence. Largeur de raie : 8,7 kHz (pic à pic).

(d) Avec peigne de fréquence ( $\Omega' = 56$  kHz) d'indice  $\beta' = 1,4$ .

Largeur de raie : 7,6 kHz.

L'augmentation du signal apportée par les différentes classes de vitesses non nulles n'est pas suffisante pour rattraper la diminution due à la répartition de l'énergie sur les différentes bandes latérales.

Notons que les résonances observées sont une superposition de réponses de classes de vitesses différentes, ayant chacune leur propre paramètre de saturation et donc leur propre élargissement par saturation. On retrouve le phénomène de saturation différentielle décrit au paragraphe précédent.

#### 3.4.7.2.2 Détection hétérodyne à haute fréquence ( $\Omega = 80$ kHz)

La raie  $Q(43)F_1^8$  de  $SF_6$ , détectée par la technique de modulation à haute fréquence ( $\Omega = 80$  kHz), est présentée sur la figure 3.4.14 (a) à haute résolution (FWHM = 4,3 kHz). L'intensité du laser est de l'ordre de 6  $\mu$ Watt et la pression dans la cuve de  $2 \times 10^{-5}$  Torr. Le rapport signal sur bruit pour une constante de temps de 10 ms est de l'ordre de 30. Lorsqu'on applique le peigne de fréquences à l'aide d'une seconde modulation de fréquence ( $\Omega' = 56$  kHz), d'indice  $\beta' = 1,25$ , le signal s'affine notablement et diminue car il est peu saturé. Si l'on augmente l'intensité du laser de façon à rétablir un élargissement par saturation identique à celui de la figure 3.4.14(a), (25  $\mu$ W), nous obtenons le spectre (c). Le rapport signal sur bruit est de l'ordre de 60 pour  $\tau = 10$  ms, soit à largeur de raie identique, deux fois meilleur qu'en l'absence du peigne de fréquence ( $\beta' = 0$ ). Enfin, si l'on supprime ce peigne de fréquences à 56 kHz, à même puissance laser, la raie s'élargit à nouveau considérablement par saturation : spectre (d) : FWHM = 5,44 kHz. Noter l'apparition de résonances supplémentaires sur les ailes de la raie d'absorption. La fréquence de modulation choisie pour réaliser le peigne de fréquences à 56 kHz produit une série de résonances à  $\omega_0 \pm n \frac{\Omega'}{2}$  trop proches de la fréquence de détection  $\Omega = 80$  kHz. Il serait souhaitable de pouvoir augmenter l'une ou l'autre de ces fréquences en utilisant un modulateur électro-optique, par exemple, à la place des céramiques piézo-électriques modulant la longueur de la cavité laser.

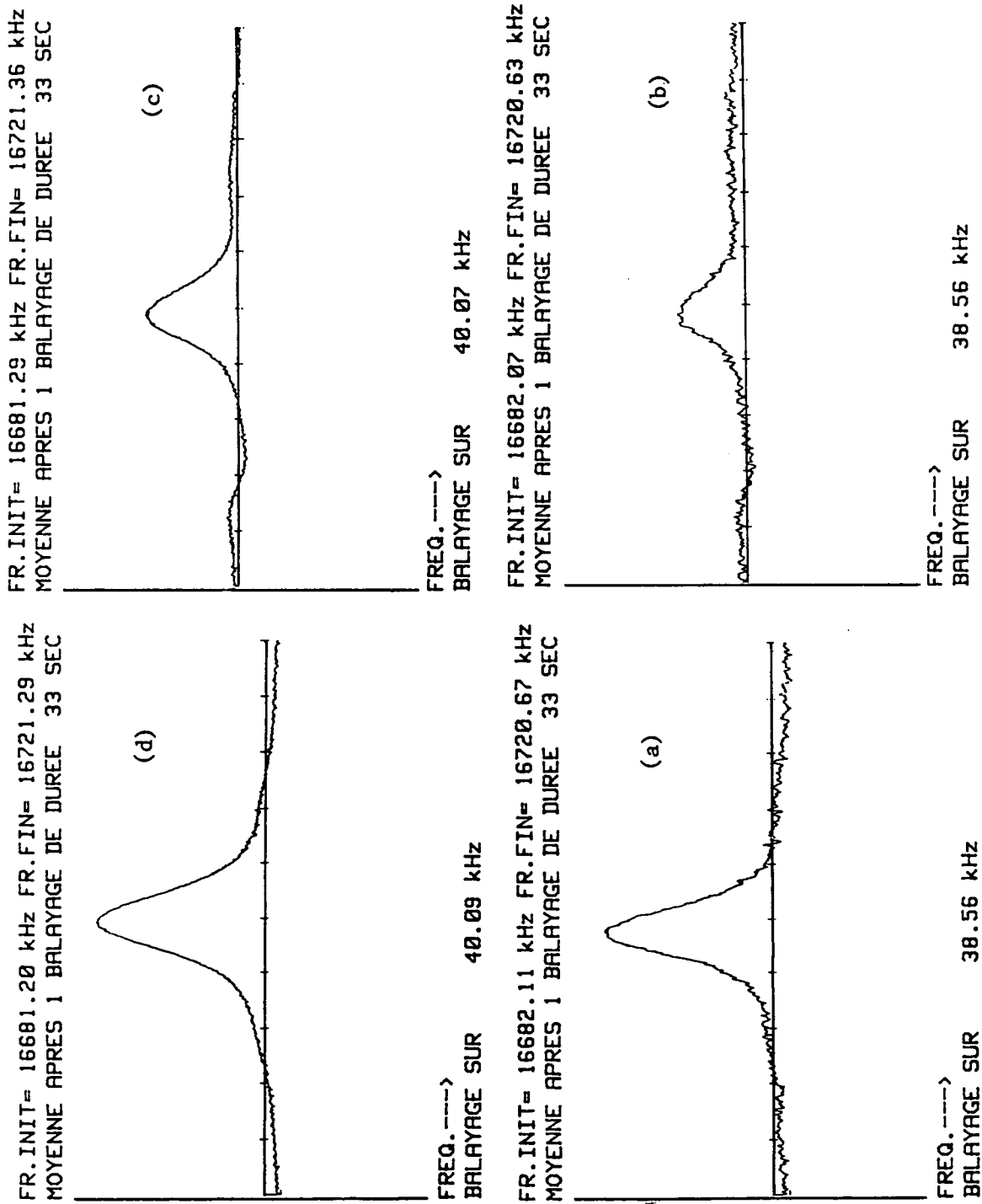


FIGURE 3.4.14

(a) (b) (c) (d)



FIGURE 3.4.14 - Contribution au signal de saturation de plusieurs classes de vitesses en détection hétérodyne à haute fréquence ( $\Omega = 80$  kHz).

Raie  $Q(43)F_1^8$  de  $SF_6$  à très haute résolution ; pression  $2 \times 10^{-5}$  Torr.

(a) et (b) Intensité  $6 \mu W$ , constante de temps : 30 ms.

(a) Sans peigne de fréquence supplémentaire ( $\beta' = 0$ ). Largeur à mi-hauteur (L.M.H.) 4,3 kHz.

(b) Avec peigne de fréquence à  $\Omega' = 56$  kHz d'indice  $\beta' = 1,25$  L.M.H. = 3,8 kHz.

(c) Mêmes conditions que (b) mais l'intensité du laser est multipliée par 4 de façon à rétablir un élargissement par saturation identique à (a).

Intensité :  $25 \mu W$ . L.M.H. : 4,25 kHz. Le rapport signal sur bruit est deux fois meilleur qu'en (a).

(d) Sans peigne de fréquence supplémentaire ( $\beta' = 0$ ), et avec la même intensité qu'en (c). La raie s'élargit notablement par saturation. L.M.H. = 5,45 kHz.

(c) et (d) : constante de temps : 10 ms.

### 3.5 LES RÉSULTATS SPECTROSCOPIQUES

#### 3.5.1 STRUCTURES FINES, SUPERFINES, HYPERFINES ET SUPERHYPERFINES DANS LA BANDE $\nu_3$ DE $\text{SF}_6$ [33, 34, 61, 95, 31, 29]

##### 3.5.1.1 Introduction

La spectroscopie infrarouge de  $\text{SF}_6$  et plus généralement des toupies sphériques possède une longue histoire, à la fois sur un plan théorique et sur un plan expérimental. En effet, si les premiers spectres infrarouges et Raman de  $\text{SF}_6$  remontent à 1934 [163], c'est dès la fin des années 1950 qu'un formalisme tensoriel pour l'écriture de l'hamiltonien de vibration-rotation est développé par J. MORET-BAILLY [62, 131]. Malgré l'observation de quelques raies de saturation en 1969 [6], il a fallu attendre 1975 (mise au point de diodes lasers PbSnTe balayables sur 50 GHz et spectroscopie d'absorption linéaire de  $\text{SF}_6$  sur de tels intervalles) ainsi qu'un travail théorique considérable, pour que des valeurs de J déterminées puissent être, pour la première fois, attribuées aux transitions observées [65, 29, 130]. Parallèlement, le formalisme tensoriel pour les toupies sphériques (groupe double et algèbre de Racah) s'est étendu à une grande variété de problèmes [131-138, 166-168].

Les différents niveaux de résolution et de structures qui peuvent être observées dans la bande  $\nu_3$  de la molécule  $\text{SF}_6$  sont illustrés de façon schématique sur la Figure 3.5.1 .

A la résolution la plus faible, spectre (a), on trouve seulement l'enveloppe des branches P,Q,R, enregistrées avec un spectromètre à grille de Girard, de résolution  $0,07 \text{ cm}^{-1}$  [128] . Plusieurs bandes chaudes sont également visibles. L'étape suivante, spectre (b), nécessite l'emploi de diodes laser à semi-conducteur ou de la spectroscopie par transformée de Fourier. Cette étape a mis en évidence la structure fine tensorielle de chaque multiplicité J [129,130], qui provient d'effets anisotropes induits par la rotation (dans  $\nu_3 = 0$  et  $\nu_3 = 1$ ) et par la vibration (dans  $\nu_3 = 1$ ). Cette structure tensorielle n'est que partiellement résolue, à cause de la largeur Doppler des raies (30 MHz à température ambiante). De nombreux amas, tels que l'amas  $A_1A_2F_1F_2$  du spectre (b), ne sont pas résolus. Ces amas apparaissent de façon très régulière aux deux extrémités des multiplicités

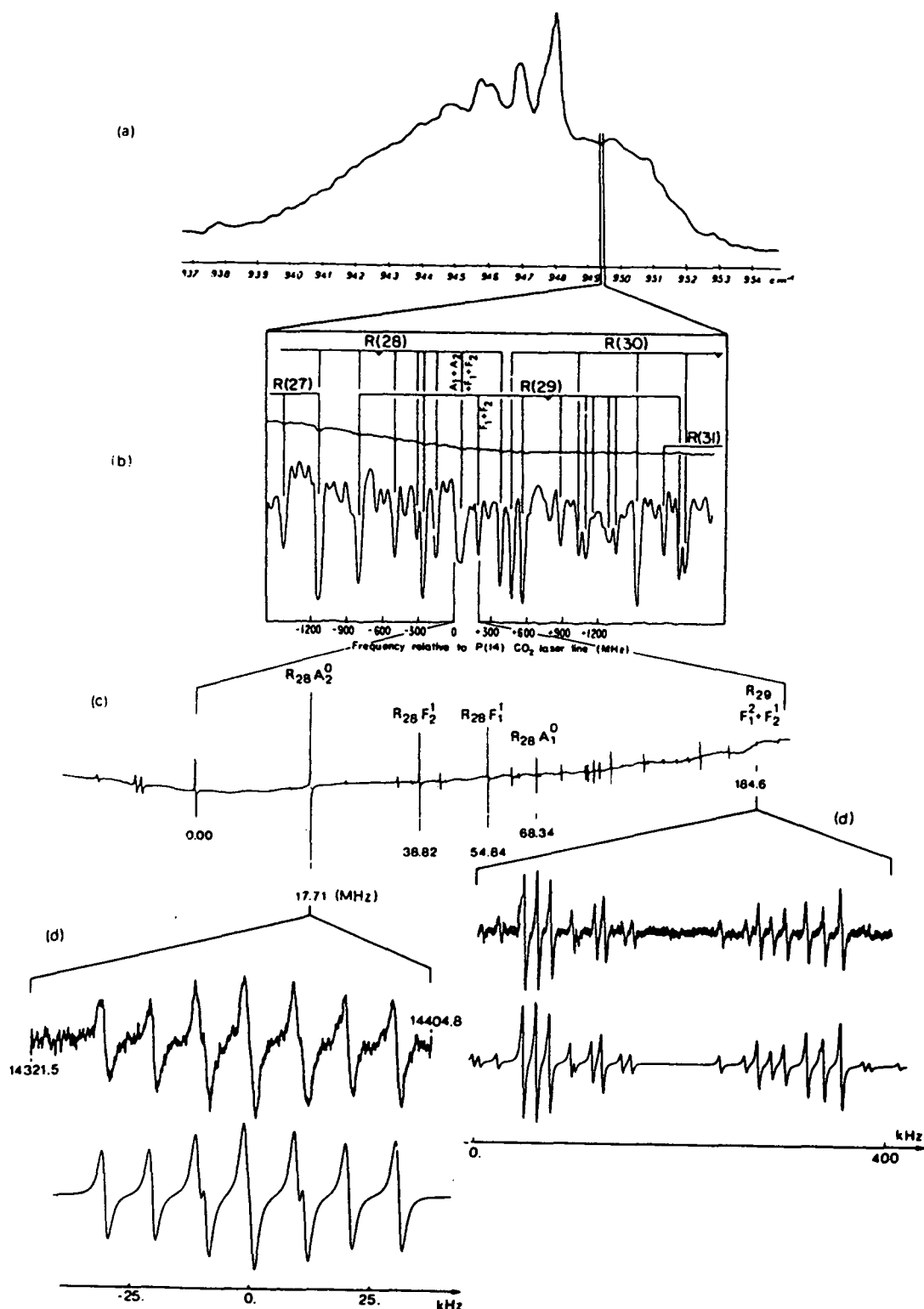


FIGURE 3.5.1

A la résolution la plus faible (spectre (a) du haut), on retrouve seulement l'enveloppe des branches P, Q et R enregistrées avec un spectromètre à grille de Girard de résolution 0,07 cm<sup>-1</sup>. La structure fine tensorielle des raies apparaît sur le spectre de diodes laser (b) limité à la largeur Doppler. La structure superfine des amas R<sub>28</sub>, A<sub>1</sub>, F<sub>1</sub>, F<sub>2</sub>, A<sub>2</sub> et R<sub>29</sub>, F<sub>1</sub>, F<sub>2</sub> n'est résolue que sur le spectre d'absorption saturée (c) obtenu avec le laser <sup>2</sup>guide d'ondes LG01 libre. Enfin les structures hyperfines ne sont visibles que sur les spectres (d) obtenus avec contrôle électronique de fréquence.

en J et furent d'ailleurs initialement mis en évidence par ordinateur. La physique sous-jacente à ces amas apparaissant dans les spectres infrarouges des toupies sphériques ( $\text{CF}_4$ ,  $\text{SF}_6$ ,  $\text{SiH}_4$ ,  $\text{OsO}_4$ ,  $\text{SiF}_4$ , ...) a été bien expliquée par les travaux de W.G. HARTER et C.W. PATTERSON [139-142]. Ces auteurs, qui ont suivi la voie ouverte par A.J. DORNEY et J.K. WATSON [169], ont en effet montré que ces amas ("clusters") avaient pour origine une brisure spontanée de symétrie dans la molécule, pouvant être induite, entre autres, par la distorsion centrifuge tensorielle. Le groupe de recouvrement initial de la molécule ( $T_d$  ou  $O_h$  pour les toupies sphériques) se réduit alors à un sous-groupe de plus basse symétrie ( $C_3$  ou  $C_4$ ). Comme il y a respectivement 8(6) axes de rotation équivalents, il reste une dégénérescence d'ordre 8 (ou 6). Tout effet tunnel entre ces 8(6) axes de rotation équivalents tendra à résoudre ces amas en composantes individuelles repérées par les représentations irréductibles du groupe de recouvrement initial ( $O_h$ ).

Dans ce modèle simple, les structures super fines correspondantes sont des doublets, triplets ou quadruplets, avec des écartements en fréquence bien définis. C'est à ce niveau de résolution qu'interviennent les méthodes de spectroscopie sans effet Doppler, comme la spectroscopie de saturation.

Sur le spectre (c), enregistré à l'aide du laser guide d'ondes LGO 1 libre, avec une résolution de l'ordre de 20 kHz, le quadruplet  $A_2F_2F_1A_1$ , présentant environ 16 MHz entre composantes, est complètement résolu.

Enfin, à la plus haute résolution (1 kHz) obtenue avec le spectromètre de saturation de Villeteuse [30,31,37,61], apparaît la structure hyperfine magnétique de chacune des raies ro-vibrationnelles. Spectre (d). Cette structure hyperfine magnétique provient de l'interaction des spins des noyaux avec les divers champs magnétiques présents dans la molécule : interactions spin-spin, spin-rotation, et spin-vibration.

La plage d'accordabilité du laser guide d'ondes à  $\text{CO}_2$  (ou à  $\text{N}_2\text{O}$ ) permet d'atteindre plus d'une centaine de transitions ro-vibrationnelles des branches P, Q, R de cette bande  $\nu_3$  de  $\text{SF}_6$ , avec des valeurs de J s'étendant de 3 à 94.

• Il est alors clair que la mesure de la fréquence absolue de chacune de ces transitions avec une incertitude de l'ordre du kHz, est un test extrêmement précis de l'hamiltonien de vibration-rotation des molécules toupies sphériques. A partir de l'ensemble de ces mesures de fréquences, une première détermination d'un jeu de paramètres spectroscopiques pour la bande  $\nu_3$  par une méthode de moindres carrés, réalisée en collaboration avec C. CANTRELL, présentait une déviation standard supérieure à 330 kHz [61]. Cette déviation standard était d'environ deux ordres de grandeur supérieure à la précision actuelle des mesures expérimentales. C'est pourquoi nous nous sommes récemment adressés à l'équipe de DIJON, spécialiste de ces problèmes. Ainsi, B. BOBIN et coll. ont déjà obtenu un résultat préliminaire très encourageant, deux fois meilleur que la précédente détermination [143].

• Dans un deuxième temps, nous avons enregistré la structure hyperfine, avec une résolution de l'ordre du kHz, de chacune de ces transitions de vibration-rotation. Comme il apparaît sur les figures 3.5.2 à 3.5.6, des structures d'une très grande richesse ont ainsi pu être mises en évidence.

Il n'est pas dans l'objet de ce mémoire de développer l'étude de physique moléculaire qui permet d'interpréter et de reproduire théoriquement l'ensemble de ces spectres. Le lecteur intéressé trouvera dans la thèse d'Etat de Ch. BREANT [144], l'atlas complet de toutes ces structures et pour chacune d'entre elles, une comparaison détaillée avec la théorie développée dans les références [33, 34, 145]. L'ensemble de ce travail sera publié ultérieurement.

Nous nous limiterons ici à présenter deux des résultats les plus marquants qui ont pu être mis en évidence pour la première fois avec le spectromètre de Villeteuse.

- 1) la brisure du type de symétrie des niveaux de vibration-rotation dans le groupe ponctuel de la molécule [33, 34]
- 2) l'observation de structures superhyperfines [31, 35].

#### 3.5.1.2 La brisure du type de symétrie des niveaux de vibration-rotation [33, 34].

Comme chacun sait, les niveaux ro-vibrationnels sont repérés par les représentations irréductibles du groupe de recouvrement de la configuration

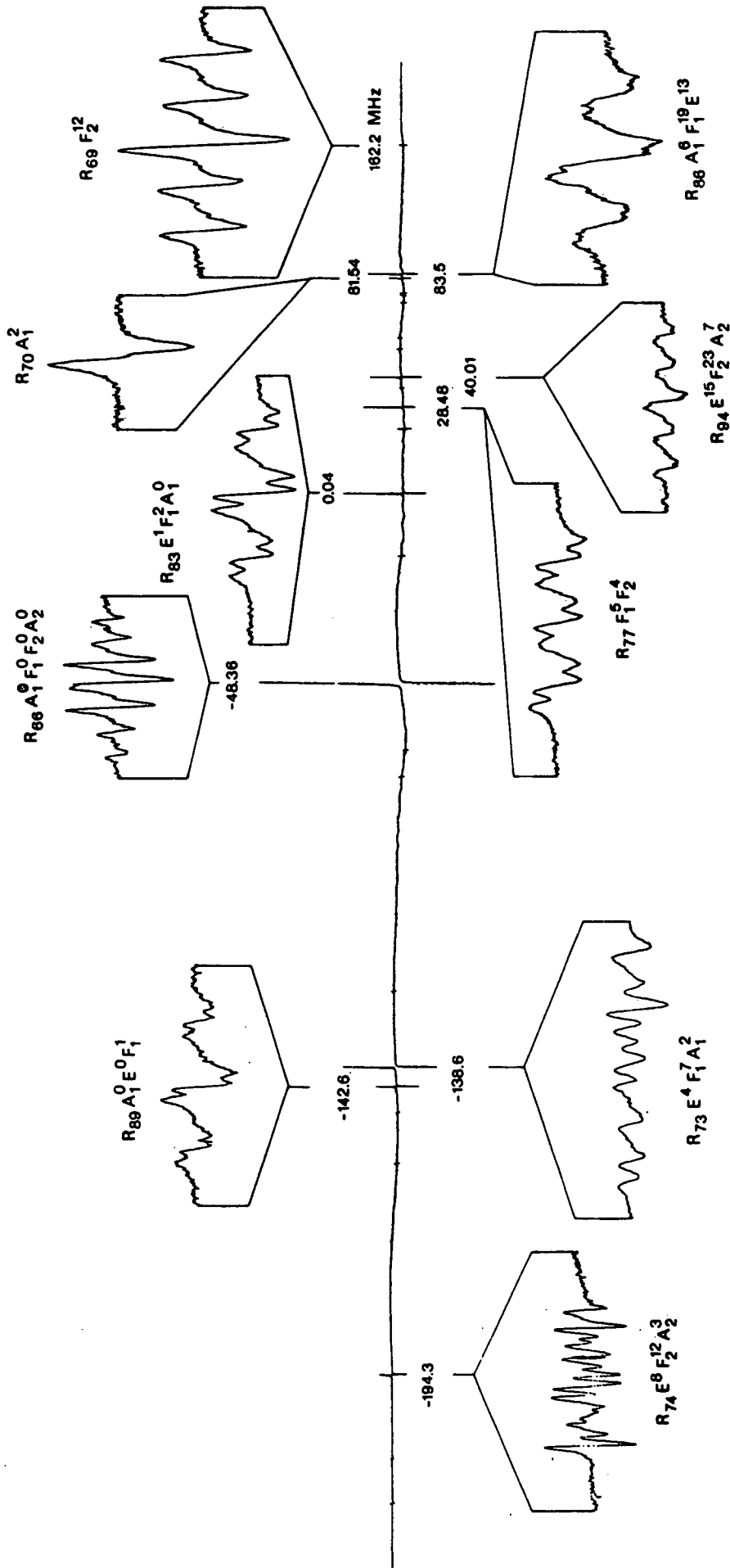


FIGURE 3.5.2

Le spectre de saturation de  $\text{SF}_6$  pour la raie P(12) de  $\text{CO}_2$  illustre la structure superhyperfine dans le cas d'amas variés. A noter que le doublet d'inversion  $R(70)A_1^2$  se sépare en ses composantes u et g. Les fréquences sont en mégahertz à partir de la raie de référence  $P(39)A_2^3$  de  $\text{Os O}_4$  à 28 516 051 989 kHz [37][31].

SATURATION SPECTRUM OF  $^{32}\text{SF}_6$  FOR THE P(14) LINE OF  $\text{CO}_2$

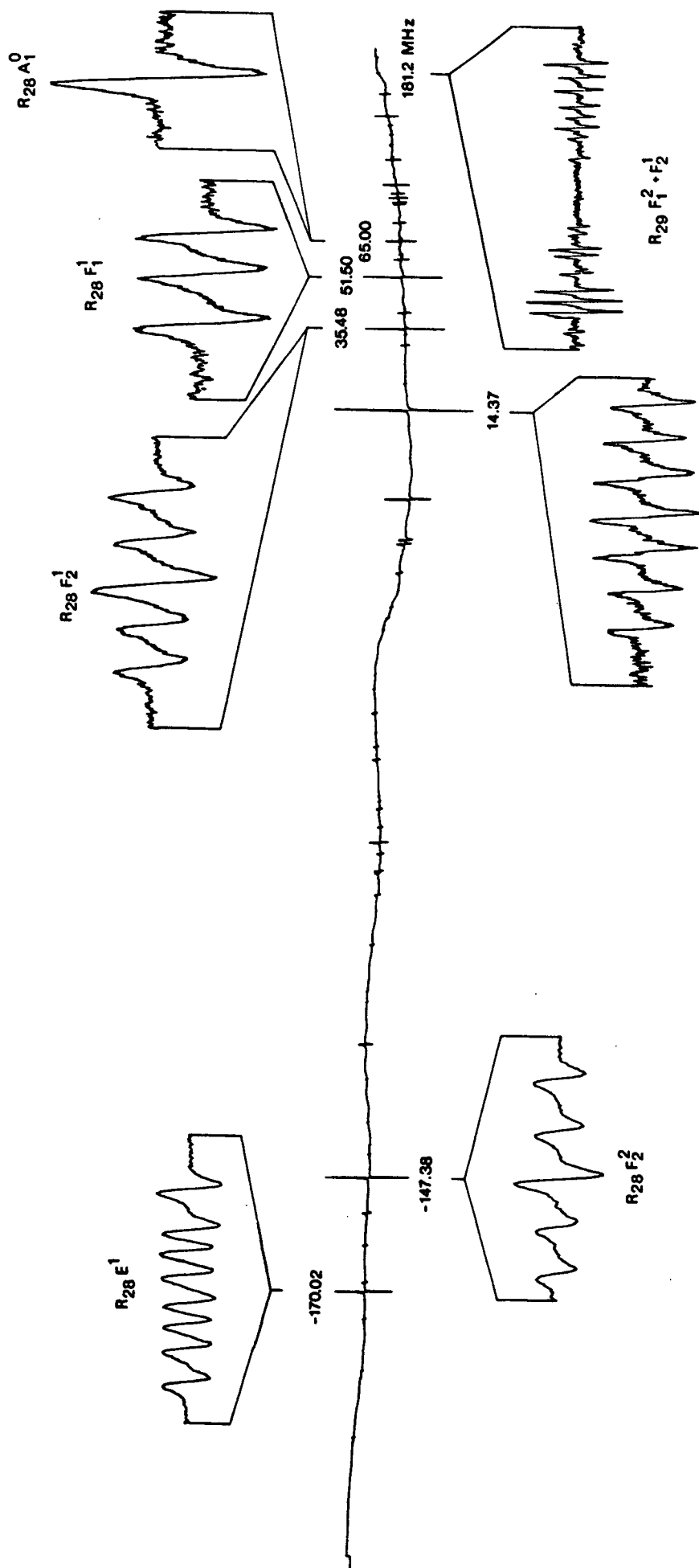


FIGURE 3.5.3

Le spectre de saturation de  $\text{SF}_6$  pour la raie P(14) de  $\text{CO}_2$  illustre la structure hyperfine de raies de vibration-rotation de types de symétrie variés dans la multiplicité R(28) de la bande  $\nu_3$ . On notera aussi la structure complexe du doublet superfin  $R(29)F_1^2 + F_2^1$  qui est un exemple typique de mélange fort d'états de vibration-rotation par les interactions hyperfines [33-35]. Les fréquences sont en mégahertz à partir de la raie de  $\text{OsO}_4$  à 28 464 676 938 kHz et la largeur de raie (mi-largeur à mi-hauteur) est de l'ordre de 1,5 kHz [31].

d'équilibre de la molécule, par exemple  $A_1, A_2, F_1, F_2, E$  pour le groupe  $O$ .

A cause des interactions hyperfines, le type de représentation perd dans certains cas son caractère de bon nombre quantique. Des niveaux de types de symétrie différents peuvent être mélangés par les interactions hyperfines, ce qui se traduit sur les spectres par l'apparition de raies nouvelles et de structures complexes telles que le doublet  $R\ 29\ F_1 F_2$  de la figure 3.5.1.

En corollaire, s'est manifestée la nécessité, auparavant négligée dans les toupies sphériques, de tenir compte de la parité (caractère  $u$  ou  $g$ ). Ceci est très bien illustré dans le cas de l'amas régulier  $Q(38)F_{2g}E_uF_{1g,u}$  (Fig. 3.5.4), par l'apparition d'un croisement de niveau exactement à mi-distance entre les raies  $E_u$  et  $F_{1g,u}$ , alors qu'il n'apparaît pas entre  $F_{2g}$  et  $E_u$ . Comme nous allons le montrer maintenant, ceci découle directement du principe de Pauli.

En effet, la fonction d'onde totale est le produit tensoriel de la fonction d'onde de spin  $\Psi_{NS}$  et de la fonction d'onde de vibration-rotation  $\Psi_{VR}$ . Ces fonctions sont caractérisées par leur type de symétrie dans le groupe  $O(3) \times G$ , produit du groupe orthogonal dans le repère du laboratoire, par le groupe  $G$  de recouvrement de la molécule. Pour une toupie sphérique telle que  $SF_6$ ,  $G = O_h$  et  $\Psi$  doit être  $A_{2u}$  pour satisfaire le principe de Pauli,

$$\Psi^{(F_\tau, A_{2u})} = \left[ \Psi_{VR}^{(J_\tau, nC)} \times \Psi_{NS}^{(I_g, C')} \right]^{(F_\tau, A_{2u})} \quad (3.85)$$

où  $F_\tau$ ,  $J_\tau$ , et  $I_g$  caractérisent la représentation dans  $O(3)$ , ( $\tau$  est l'indice de parité), tandis que  $A_{2u}$ ,  $C$  et  $C'$  caractérisent les représentations dans  $G$ , et l'indice  $n$  distingue les représentations irréductibles identiques pour les fonctions d'ondes de vibration-rotation.

Les fonctions d'ondes nucléaires ne peuvent avoir qu'un certain nombre de types de symétrie  $C'$  dans  $O_h$ :  $A_{1g}$ ,  $A_{2g}$ ,  $A_{2u}$ ,  $E_g$ ,  $F_{1u}$ ,  $F_{2u}$ ,  $F_{2g}$  [146]. La formule (3.85) et le principe de Pauli indiquent alors que les états de vibration-rotation ne peuvent être que de l'un des types  $C$  suivants :

$$C = A_{1g}, A_{1u}, A_{2u}, E_u, F_{1u}, F_{1g}, F_{2g} \quad (3.86)$$



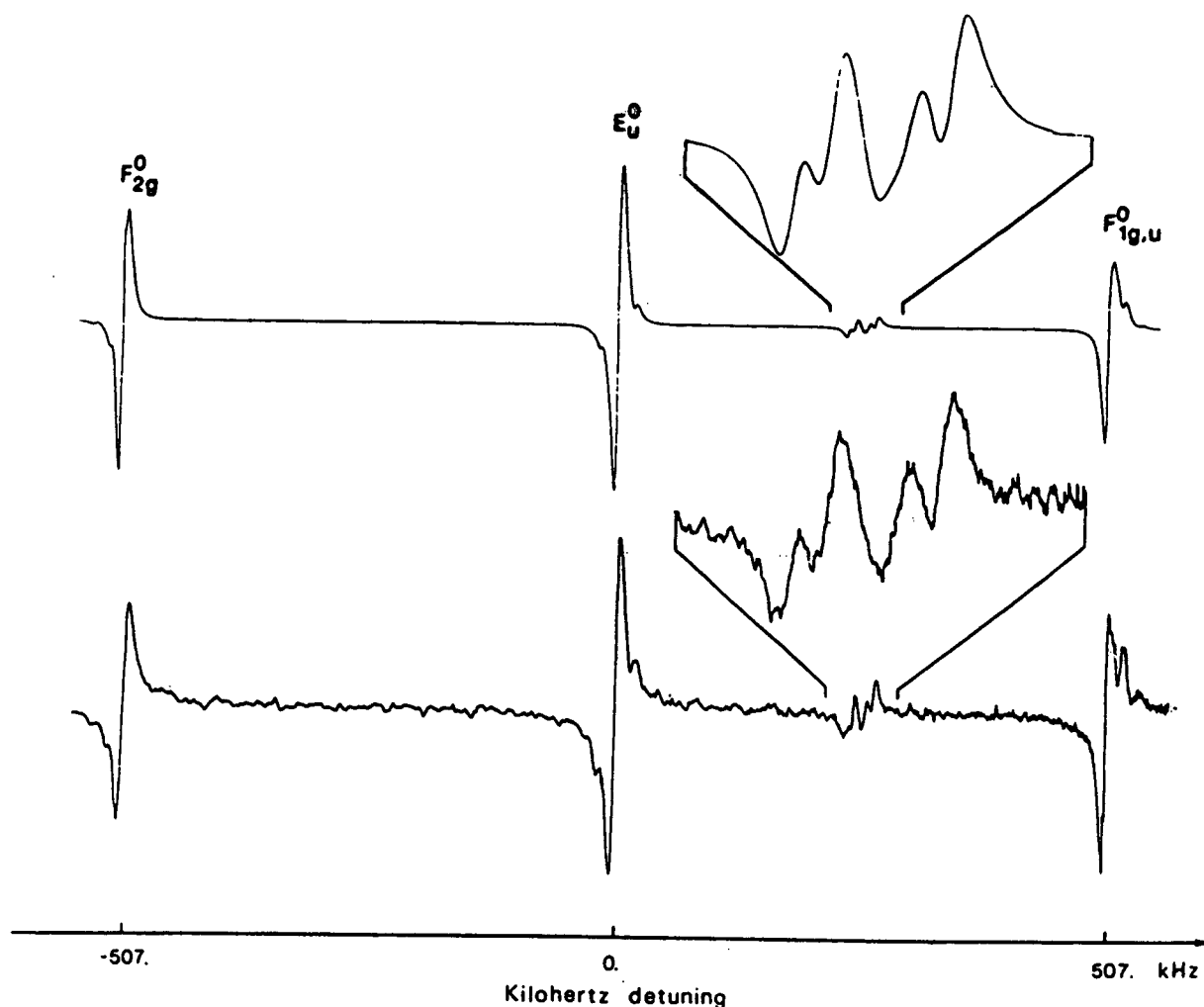


FIGURE 3.5.4

Spectres théorique (haut) et expérimental (bas) de l'amas  $Q(38)F_{2g}^0 E_u^0 F_{1g,u}^0$ , illustrant la présence d'un croisement de niveaux (à mi-distance entre raies principales) induit par l'hamiltonien hyperfin. Celui-ci ne peut mélanger que deux états ro-vibrationnels de même parité, de sorte que le croisement n'apparaît qu'entre  $E_u^0$  et  $F_{1g,u}^0$  [33,34]. Il existe également un autre croisement entre  $F_{2g}$  et  $F_{1g}$ , non visible sur le spectre, car il se trouve confondu avec la transition  $E_u$  [33].

Dans l'état vibrationnel fondamental, le caractère u ou g dans  $O_h$  est identique à la parité totale et est conservé par les interactions hyperfines (on néglige les effets d'interactions faibles pouvant éventuellement violer la parité). Ainsi l'hamiltonien hyperfin ne peut mélanger que deux états ro-vibrationnels de même parité. Les croisements de niveaux par effet Doppler entre raies correspondant à des états fondamentaux de parité opposée sont absents; par exemple celui qui serait situé à mi-distance entre les raies  $E_u^0$  et  $F_{2g}^0$  sur la figure 3.5.4 est absent, tandis que son homologue entre  $F_{1u}$  et  $E_u$  est apparent.

De la même façon, les opérateurs hyperfins peuvent s'écrire comme produit tensoriel d'un opérateur de spins nucléaires et d'un opérateur de vibration-rotation:

$$H^{(0_g, A_{1g})} = \left[ H_{VR}^{(k_g, C)} \times H_{NS}^{(k_g, C)} \right] (0_g, A_{1g}) \quad (3.87)$$

et seul l'opérateur total doit être invariant dans les opérations du groupe  $O(3) \times G$ . Chacun des deux hamiltoniens  $H_{VR}$  et  $H_{NS}$  dans la formule (3.87) peut être un tenseur ( $C \neq A_{1g}$ ), de sorte qu'apparaît la possibilité de coupler deux états de vibration-rotation de types de symétrie dans  $G$  différents.

L'amas R 29  $F_{1u,g}$ ,  $F_{2g}$  présenté sur la figure 3.5.1 est un exemple de fort mélange des états de vibration-rotation par les interactions hyperfines, et illustre par conséquent la violation de la règle de sélection  $\Delta C = 0$ . De même les amas :

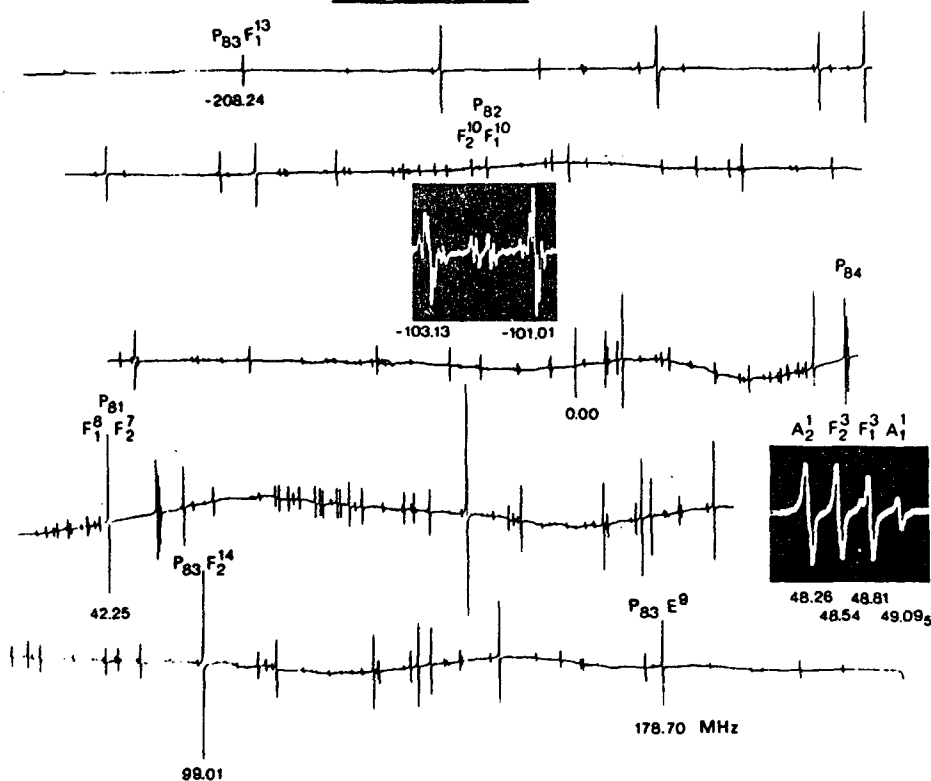
$$Q(51) F_{2g}^6, F_{1g,u}^6; Q(53) F_{2g}^6, F_{1g,u}^6; Q(54) A_{2u}^2, E_u^4;$$

$$Q(55) F_{2g}^6, F_{1g,u}^6; Q(38) F_{2g}^0, E_u^0, F_{1g,u}^0$$

présentent tous des croisements de niveaux qui manifestent également ce fort mélange.

L'amas Q(52)  $E^4 F_1^6 A_1^2$  (Fig. 3.5.6) est spécialement intéressant, car il présente un dédoublement d'inversion spectaculaire. En l'absence de tout effet tunnel d'inversion dans la molécule, la raie Q(52)  $A_{1u,g}$  est dédoublée par les interactions hyperfines en ses deux composantes  $A_{1u}$  et  $A_{1g}$ , distantes d'environ 34 kHz. Ce doublet d'inversion est également apparent sur la raie R(70)  $A_1^2$  de la figure 3.5.2.

FIGURE 3.5.5



$\text{SF}_6$  saturation spectrum ranging over 250 MHz on either side of the P(22)  $\text{CO}_2$  laser line. Frequency detunings are in MHz from the reference line at 28.251 957 355 THz [11]. Two different cluster patterns are illustrated: the P(82)  $F_2^{10} F_1^{10}$  four-fold axis cluster and the P(84)  $A_1^3 F_2^3 F_1^3 A_1^1$  three-fold axis cluster with three equal splittings.

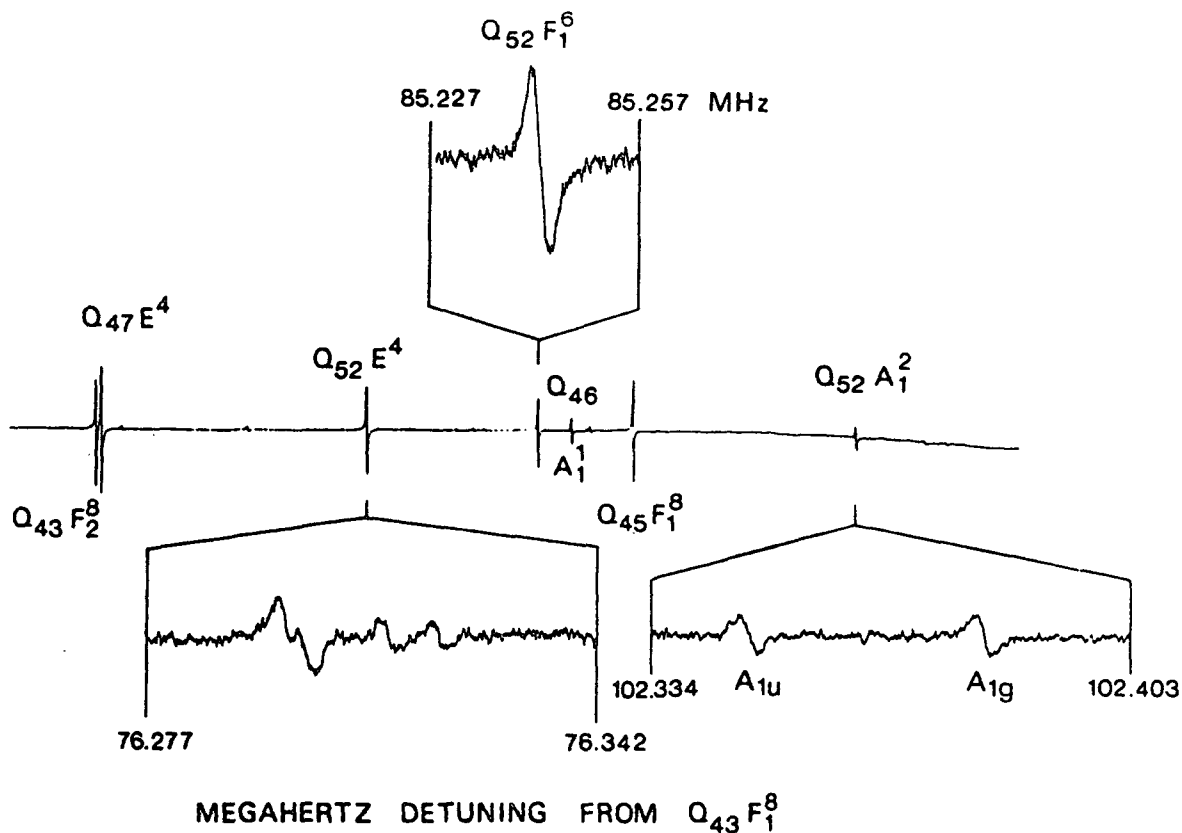


FIGURE 3.5.6

Structure détaillée d'un amas E,  $F_1$ ,  $A_1$  présentant un dédoublement spectaculaire de la raie  $Q(52)A_1^2$  en ses composantes  $A_{1u}$  et  $A_{1g}$  dû au mélange hyperfin entre les composantes  $A_{1u}$  et  $E_u$ .

### 3.5.1.3 Observation de structures superhyperfines [ 31, 35 ]

3.5.1.3.1 Comme nous venons de le rappeler, la structure en amas (dite superfine) est une conséquence de la brisure spontanée de symétrie dans la molécule. Le groupe de recouvrement de la molécule n'est plus  $G$  mais un sous groupe de plus basse symétrie ( $C_3$  ou  $C_4$ ). Généralement, cette structure en amas qui ne provient que de l'hamiltonien de vibration-rotation, est bien résolue à l'aide de la spectroscopie de saturation. L'amas  $R(28) A_2 F_2 F_1 A_1$  sur la figure 3.5.3 présente environ 16 MHz entre composantes. Cependant, ces amas, pour les valeurs élevées de  $J$  et vers les extrémités des multiplicités en  $R$ , deviennent extrêmement serrés. Les écarts de fréquence entre transitions ro-vibrationnelles pures peuvent devenir très réduits : de l'ordre de quelques Hz à quelques  $10^{-12}$  Hz !!. L'effet tunnel entre axes équivalents au nombre de six ou huit selon qu'il s'agit du sous-groupe  $C_4$  ou  $C_3$ , devient de moins en moins efficace. Cette situation est appelée par W. HARTER "superhyperfine" [140].

Dans une telle situation, les énergies superfines deviennent négligeables devant les énergies hyperfines de l'ordre de quelques dizaines de kHz.

L'allure des sous-niveaux dans une situation superhyperfine a été qualitativement prédite par W. HARTER, qui a tracé des diagrammes de corrélation, tels que celui qui est présenté sur la figure 3.5.7, qui font le lien entre une situation hyperfine pure (paramètre  $S$  d'effet tunnel grand, cas 1) et une situation superhyperfine pure (paramètre  $S$  petit, cas 2) [140].

Dans le cas 2, les structures attendues sont très différentes de la simple superposition des structures hyperfines associées à chaque transition ro-vibrationnelle, puisque les interactions hyperfines mélangent, comme nous venons de le voir, les états ro-vibrationnels correspondants.

Par définition, nous appellerons structure superhyperfine l'ensemble des transitions entre une situation superhyperfine dans l'état vibrationnel fondamental et une situation superhyperfine dans l'état  $v_3 = 1$ .

3.5.1.3.2 Ces transitions superhyperfines (cas 2  $\rightarrow$  cas 2) ont été observées pour la première fois à l'aide du spectromètre de saturation de Villetaneuse [30, 31, 37, 61]. Quatre parmi les cinq types d'amas possibles,

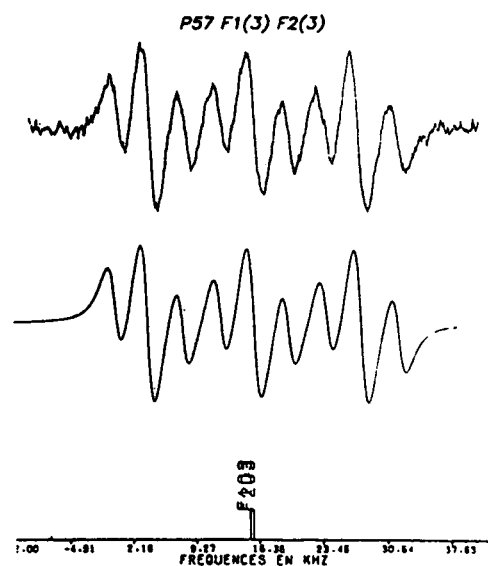
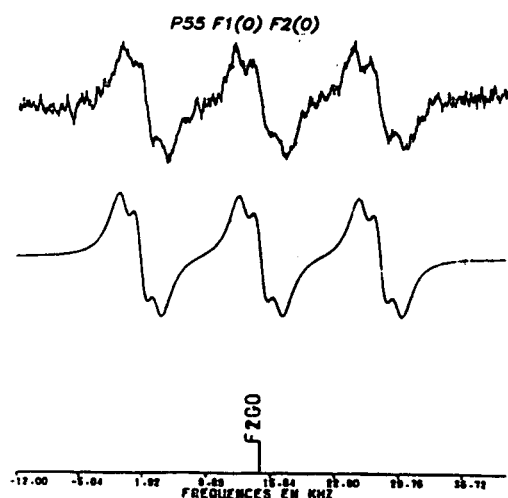
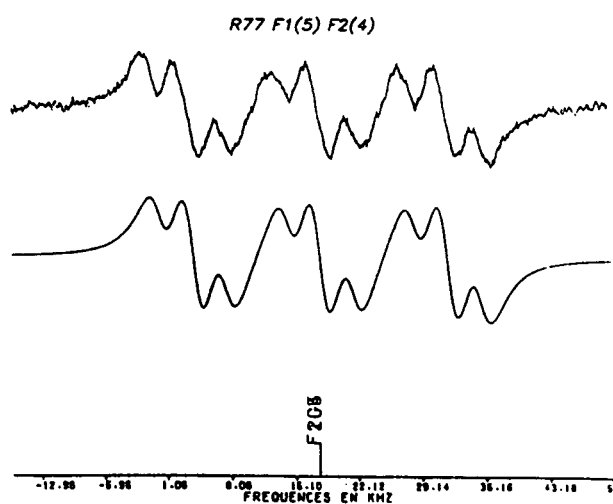
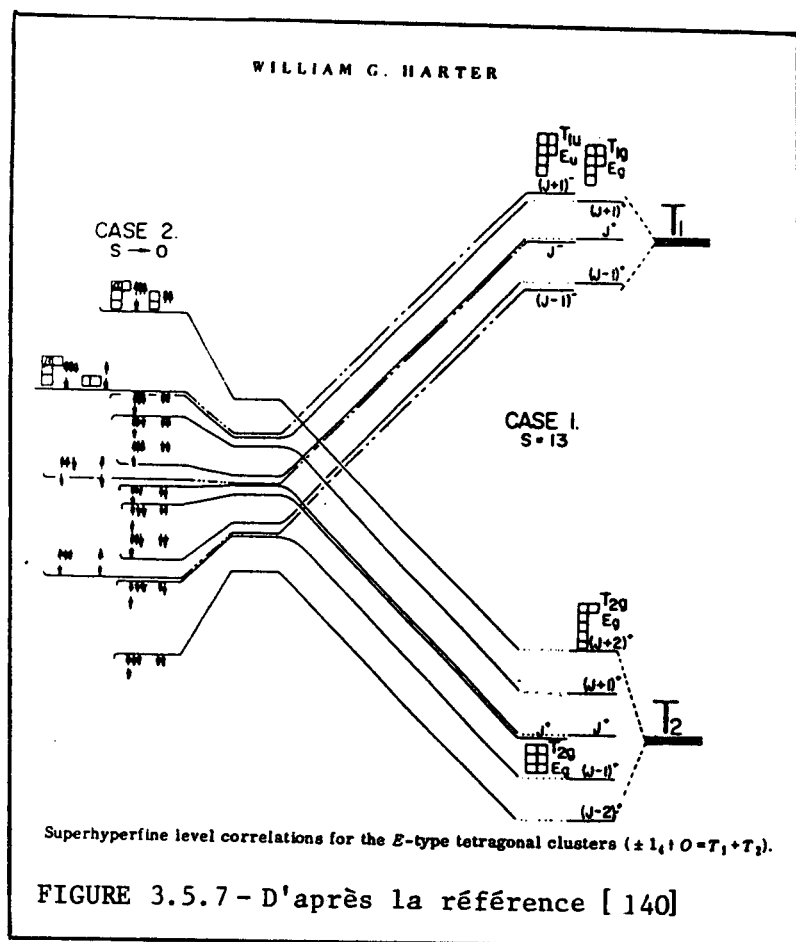


FIGURE 3.5.8

Trois amas  $F_1 F_2$  dans la bande  $\nu_3$  de  $SF_6$  présentant une structure superhyperfine (transition cas 2  $\rightarrow$  cas 2) et comparaison avec les spectres théoriques [35].

ont été observés :

- Amas  $A_1 A_2 F_1 F_2$  (axe d'ordre 3)

$$R66 \ A_1^0 A_2^0 F_1^0 F_2^0$$

- Amas  $A_1 E F_1$  (axe d'ordre 4)

$$R83 \ A_1^0 F_1^2 E^1$$

$$R86 \ A_1^6 F_1^{19} E^{13}$$

- Amas  $A_2 E F_2$  (axe d'ordre 4)

$$P56 \ A_2^3 E^8 F_2^{12}$$

- Amas  $F_1 F_2$  (axe d'ordre 4)

$$P55 \ F_1^0 F_2^0$$

$$P57 \ F_1^3 F_2^3$$

$$R77 \ F_1^5 F_2^4$$

De plus, nous avons observé quelques structures pour lesquelles l'écartement superfin est petit par rapport aux écartements hyperfins :

$$R73 \ A_1^2 E^4 F_1^7$$

$$P32 \ F_1^6 F_2^7$$

$$P81 \ F_1^8 F_2^7$$

$$R74 \ A_2^3 E^8 F_2^{12}$$

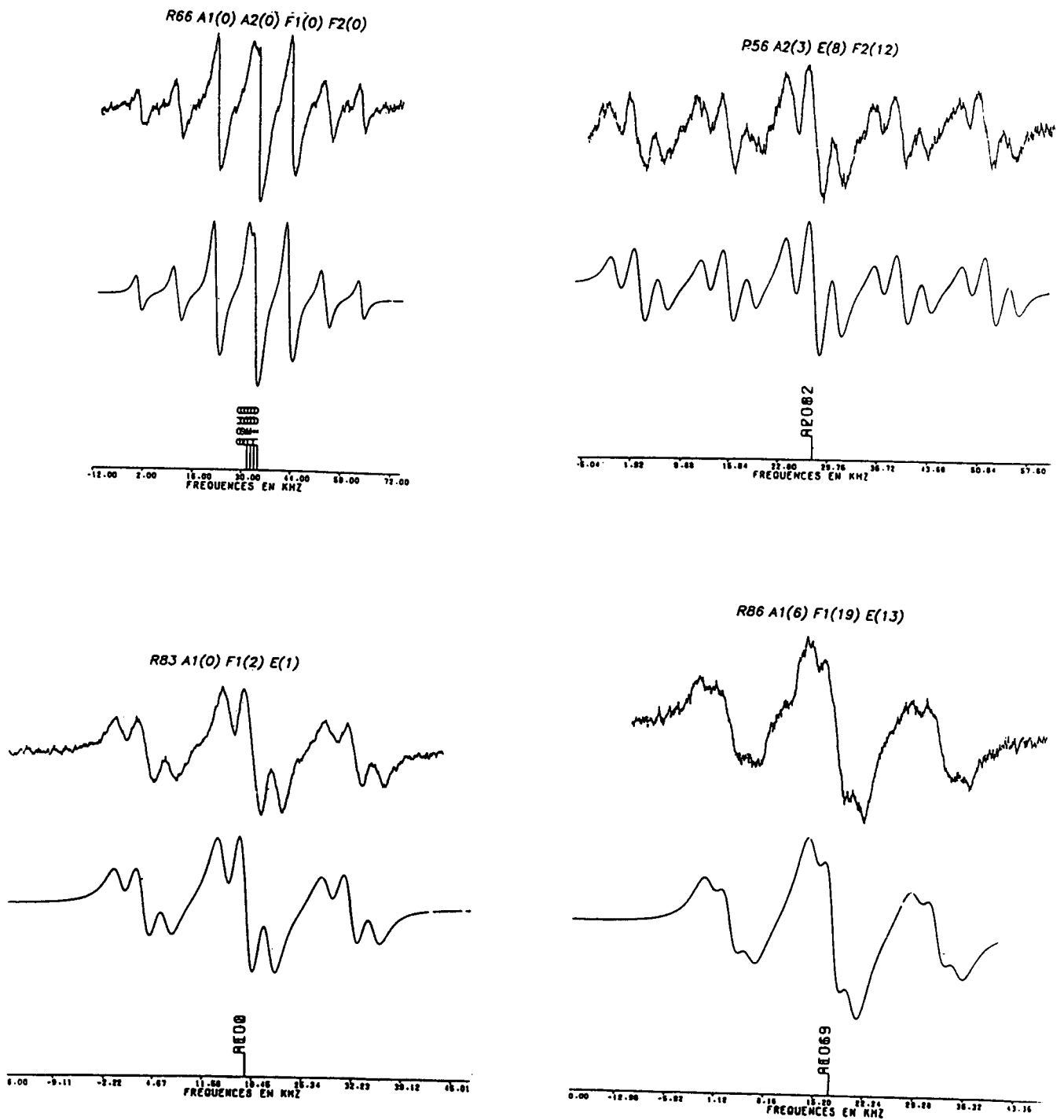


FIGURE 3.5.9

Divers types d'amas dans la bande  $\nu_3$  de  $\text{SF}_6$  présentant une structure superhyperfine (transition cas 2  $\rightarrow$  cas 2) et comparaison avec les spectres théoriques [35] .

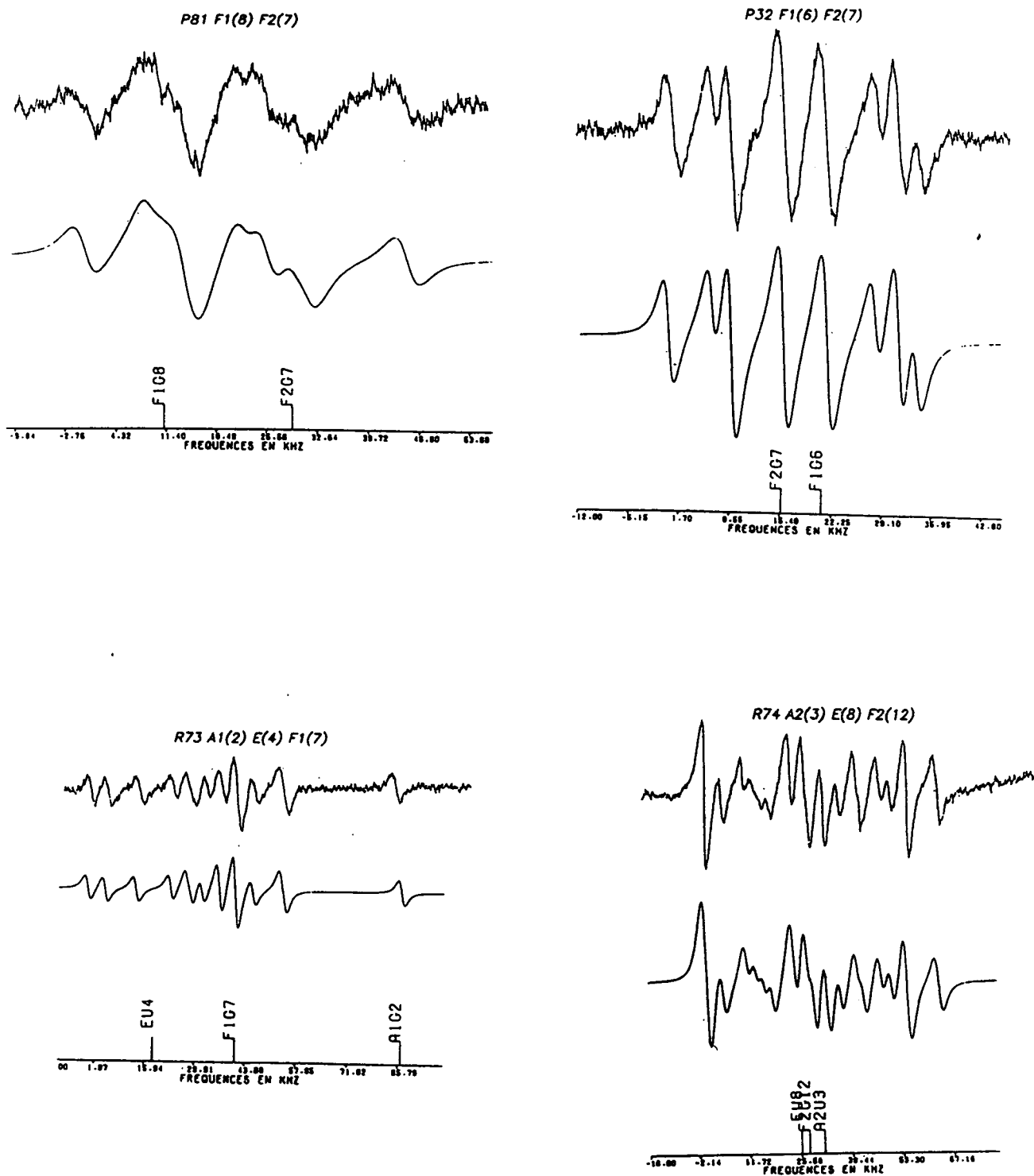


FIGURE 3.5.10

Amas dans la bande  $\nu_3$  de  $\text{SF}_6$  correspondant à une situation intermédiaire. La structure superfine n'est pas négligeable devant la structure hyperfine. Noter la complexité des structures, comparées aux cas purs des figures 3.5.8 et 3.5.9.



Comme il est apparent sur les figures 3.5.8 et 3.5.9, les spectres correspondant à une structure superhyperfine pure sont remarquablement simples, alors que dans le cas où l'écartement entre composantes superfines n'est pas complètement négligeable, la structure devient beaucoup plus compliquée (voir R73 ou R74, par exemple).

### 3.5.1.3.3 Résumé de la théorie de ces structures hyperfines et superhyperfines

Les quelques éléments de la théorie de ces structures hyperfines qui suivent, ont simplement pour objectif de montrer qu'un petit nombre de constantes de couplage permet de reproduire de façon satisfaisante la grande richesse des structures observées. Ici encore, nous renvoyons le lecteur aux références [ 34, 35, 145 ], pour plus de détails.

L'hamiltonien effectif utilisé pour cette étude peut s'écrire de la façon suivante :

$$H = H_{VR}^0 + H_{VR} + H_{hyp}$$

où  $H_{VR}^0$  représente la partie de l'hamiltonien de vibration-rotation qui ne lève pas la dégénérescence sphérique. La valeur propre correspondante  $E_{VR}^0$  est commune à tous les états de même  $J, R, \ell_3$  et  $v_3$  et sera choisie comme origine des énergies.

$J$  correspond à la valeur propre  $J(J+1)$  du carré du moment angulaire total  $\vec{J}$  dans le repère du laboratoire

$R$  correspond au moment angulaire de rotation pure; dans cette étude, il peut être considéré comme un bon nombre quantique

dans  $v_3 = 0$ ,  $J = R$

dans  $v_3 = 1$ ,  $J = R+1, R, R-1$

$\ell_3$  est le moment angulaire de vibration pure (0 ou 1),

$v_3 = 0$  ou 1.

Un état ro-vibrationnel est écrit  $|J, M, R, n, C_R, \sigma, v_3\rangle$  où  $C_R$  est le type de symétrie dans  $O_h$ ,  $n$  distingue les états de vibration-rotation d'une représentation irréductible  $C_R$  de  $O_h$ , et  $\sigma$  indique la composante de  $C_R$ . Cet état ro-vibrationnel est couplé à un état de spin nucléaire  $|I M_I C_S \sigma\rangle$

pour donner la base hyperfine :

$$|(J I) F, M_F, R, n, C_R, C_S, A_{2u}, v_3 \rangle \quad (3.88)$$

dans laquelle est écrite la matrice hamiltonienne. Nous avons vérifié que chaque amas ro-vibrationnel est suffisamment éloigné de ses plus proches voisins pour être traité indépendamment, si bien que la dimension de la base est 12 pour un amas  $F_1F_2$ , 16 pour un amas  $A_1EF_1$ , 20 pour un amas  $EF_1F_2$  et 24 pour un amas  $A_2EF_2$  ou  $A_1A_2F_1F_2$ .

L'hamiltonien ro-vibrationnel anisotrope  $H_{VR}$  peut s'écrire sous forme très générale [137] :

$$H_{VR}^{\text{tensoriel}} = \sum_{\substack{k_1 k_2 \\ K}} t_{k_1 k_2 K} \left[ v^{k_1}(\text{vib}) \times v^{k_2}(\text{rot}) \right]_{A_1}^K \quad (3.89)$$

où  $t_{k_1 k_2 K}$  est une constante moléculaire et  $[v^{k_1} \times v^{k_2}]_{A_1}^K$  sont des tenseurs de vibration-rotation de rang  $K$  construits à partir de tenseurs d'ordre  $k_1$  et  $k_2$  de vibration et de rotation, et qui ont la symétrie  $A_1$  dans  $G$ .  $H_{VR}$  est principalement constitué des deux opérateurs suivants :

$$t_{044} T_{044} + t_{224} T_{224} \quad (3.90)$$

$T_{044}$  est l'opérateur du second ordre, de distorsion centrifuge (tenseur d'ordre 4).

La constante de couplage qui lui est associée,  $t_{044}$  a été déterminée grâce aux mélanges induits par les interactions hyperfines présentés au paragraphe précédent, et vaut 5,7 Hz [33]. C'est le seul terme du second ordre conduisant à une décomposition tensorielle des niveaux dans l'état vibrationnel fondamental.

$T_{224}$ , qui n'a d'éléments de matrice non nuls que dans  $v_3 \neq 0$ , est l'opérateur tensoriel d'ordre 4 et du second ordre dans le développement de l'hamiltonien de vibration-rotation, qui prédomine dans  $v_3 = 1$ . La constante associée  $t_{224}$  est égale à 1125,58 kHz.

L'hamiltonien hyperfin  $H_{\text{hyp}}$  est la somme des opérateurs figurant dans le tableau ci-dessous, dont les expressions explicites sont calculées dans les références [34, 133, 135].

<u>Interaction</u>	<u>Constantes de couplages</u>
spin-rotation scalaire	$C_a$ , $C_{as}(v_3 = 1)$ , $C_{av}$
spin-rotation tensorielle	$C_d$ , $C_{ds}(v_3 = 1)$
spin-vibration scalaire	$A$
spin-vibration tensorielle	$A_t$
spin-spin	$d_1$
spin-spin	$d_2$

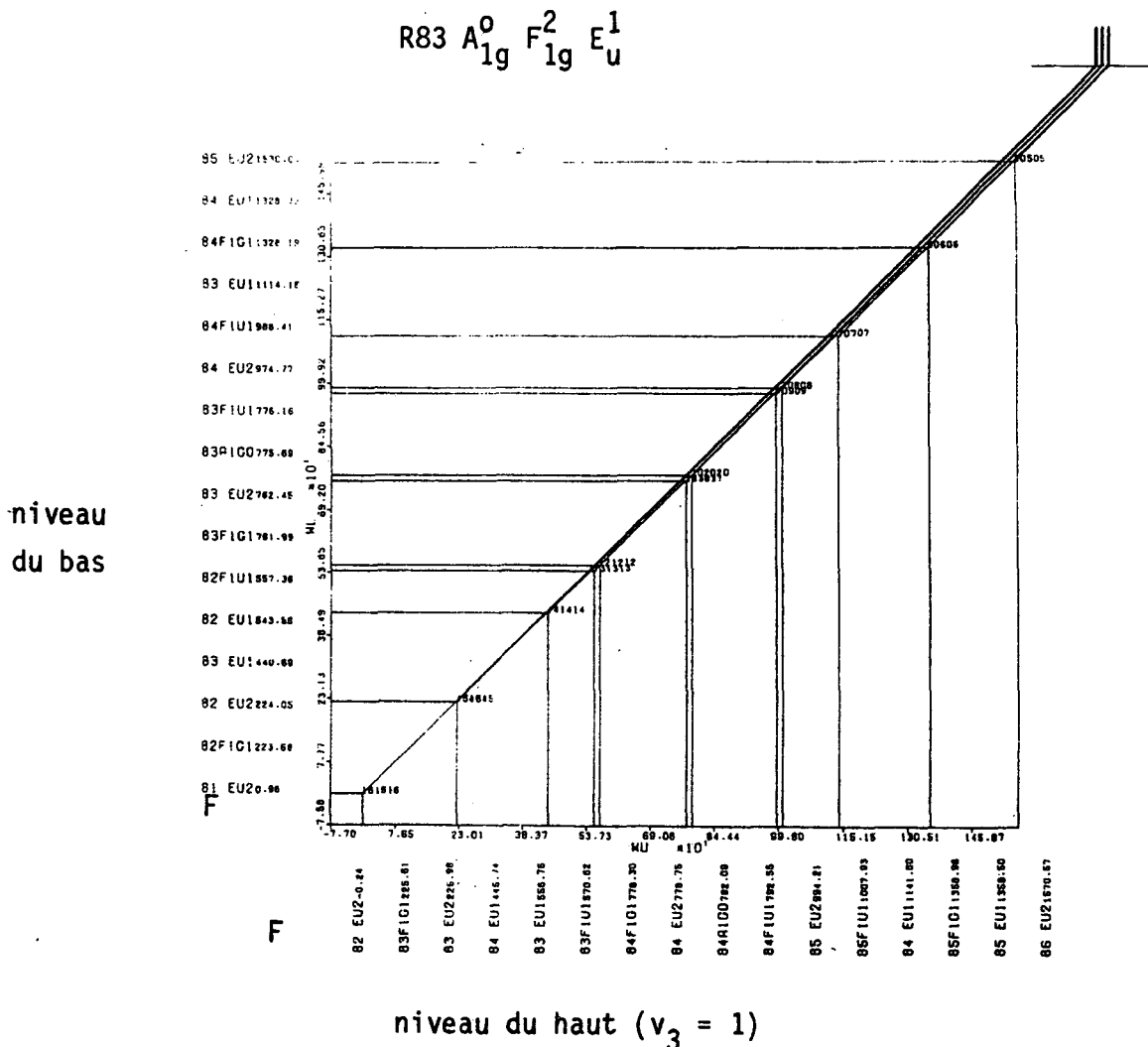
Ces constantes de couplage ont été déterminées à l'aide des structures hyperfines observées précédemment et n'ont pas été réajustées dans les spectres théoriques des figures 3.5.8 à 3.5.10 sauf pour trois cas où la constante  $C_{ds}$  a dû être très légèrement modifiée.

Par définition, dans une structure superhyperfine pure, les matrices hamiltoniennes dans  $v_3 = 0$  et  $v_3 = 1$  ont la même structure et des éléments de matrices très voisins, ce qui explique que le spectre observé soit très étroit ( $\sim 40$  kHz) bien que les énergies propres soient étalées sur plusieurs MHz.

Ceci est très bien illustré sur des nomogrammes, tels que celui de la figure 3.5.11, où sont portées en abscisse les valeurs propres dans  $v_3 = 1$ , et en ordonnée les valeurs propres dans  $v_3 = 0$ . Les transitions permises définissent un ensemble de points qui donne le spectre résultant par une projection à  $45^\circ$ .

C'est ainsi qu'ont été obtenus les spectres synthétiques théoriques, avec une largeur de raie expérimentale ajustable et des intensités provenant de la théorie en champ faible au quatrième ordre de perturbation de la référence [110].

Les spectres expérimentaux et théoriques, en quadruplets extrêmement réguliers dans le cas des axes d'ordre 4, diffèrent notablement des prédictions de W.G. HARTER dans la référence [140] et s'avèrent même plus simples. Les valeurs propres sont différentes et le nombre quantique  $F$  n'est pas strictement croissant. Cependant, les composantes des vecteurs propres sont très proches de la définition des tableaux d'YOUNG brisés de HARTER et les valeurs propres peuvent être repérées avec ces tableaux dans le groupe de permutation  $S_4 + S_2$ . L'interprétation de ces structures superhyperfines en quadruplets réguliers dans le cas des axes d'ordre quatre, est en cours et sera publiée prochainement [147].



### 3.5.2. MOLECULE $\text{OsO}_4$

Une première campagne de spectres, à l'aide du laser guide d'ondes LG01, a permis de mettre en évidence quelques transitions fondamentales des molécules  $^{189}\text{OsO}_4$ ,  $^{190}\text{OsO}_4$ ,  $^{192}\text{OsO}_4$ , de grand intérêt métrologique. Dans l'interprétation des spectres, l'étape intermédiaire à l'aide de la spectroscopie par transformée de Fourier avec la résolution Doppler est en cours et devrait permettre de préciser la position des résonances avec une précision suffisante.

Un programme d'étude à très haute résolution de la structure quadrupolaire des transitions de vibration-rotation de la molécule  $^{189}\text{OsO}_4$  sera alors possible. (Le spin de  $^{189}\text{OsO}_4$  vaut  $3/2$ ). Cette structure quadrupolaire (interdite par la symétrie sphérique de la molécule) est induite par les effets anisotropes de distorsion centrifuge et de vibration-rotation dans  $\nu_3 = 1$  [170, 171].

A titre de résultat préliminaire, nous donnons sur la Figure 3.5.12 la structure quadrupolaire électrique des transitions  $P_{49} A_2^3$  et  $A_1^3$  dans la bande  $\nu_3$  de  $^{189}\text{OsO}_4$ . Nous avons vérifié, avec une précision de l'ordre de la centaine de Hz que les écartements en fréquence entre composantes  $|F-J| = 1/2$  (36,5 kHz) étaient identiques pour les deux raies  $A_2^3$  et  $A_1^3$ . De même, les deux doublets, moins bien résolus sur la Figure 3.5.12, correspondant aux composantes  $|F-J| = 3/2$ , sont identiques avec une précision en fréquence de l'ordre de la centaine de Hertz.

Comme nous avons déjà observé un certain nombre d'autres transitions fondamentales dans la bande  $\nu_3$  de  $^{189}\text{OsO}_4$  avec le laser guide d'ondes LG01, l'étude à très haute résolution de ces structures quadrupolaires électriques devrait fournir quelques paramètres moléculaires (eqQ par exemple) avec une grande précision.

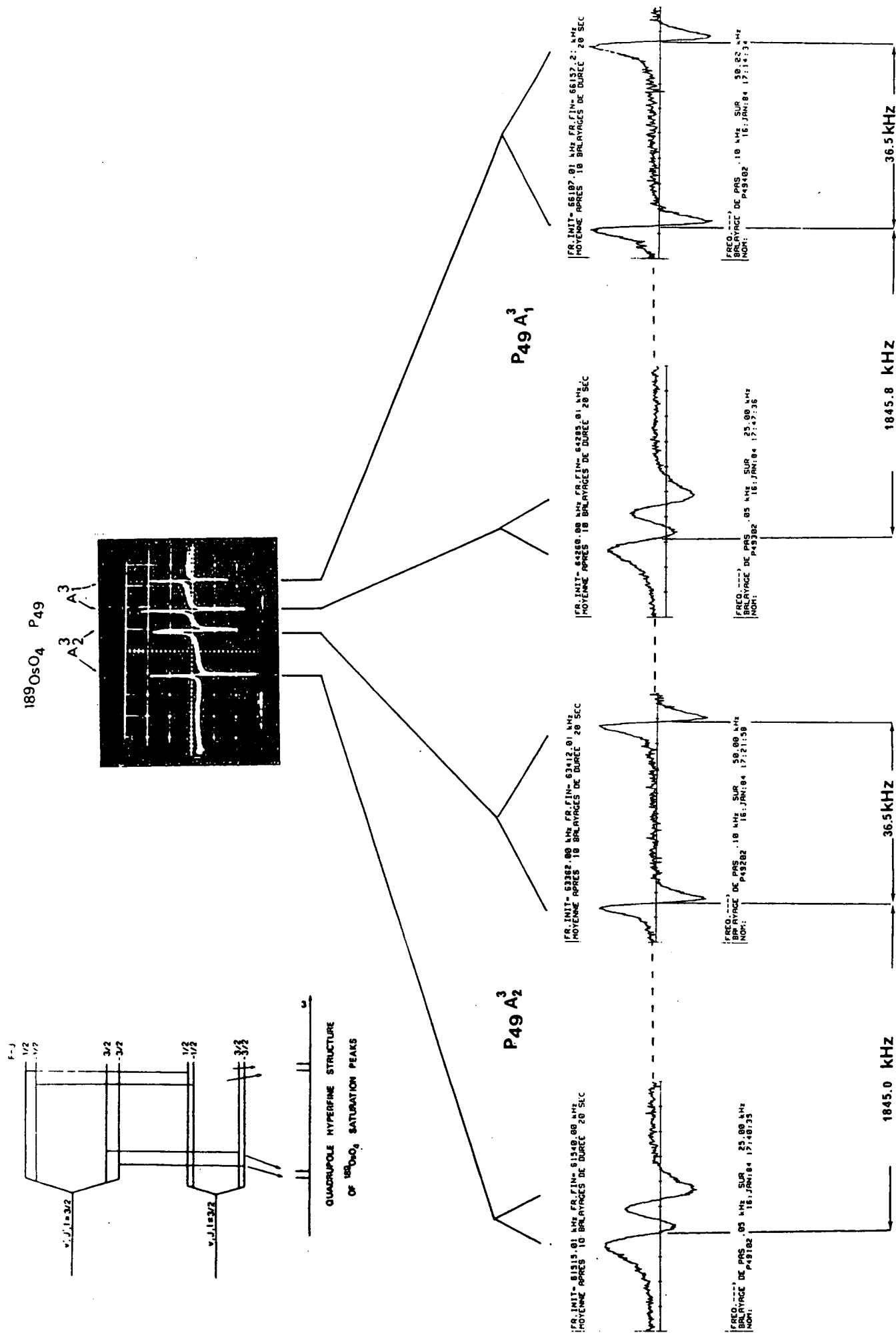


FIGURE 3.5.12

FIGURE 3.5.12 - Structure quadropolaire électrique des transitions ro-vibrationnelles  $P(49)A_2^3$  et  $A_1^3$  dans la bande  $\nu_3$  de  $^{189}\text{OsO}_4$ . Les écarts en fréquence entre composantes  $|F-J| = 1/2$  (36,5 kHz) sont identiques pour les deux raies de vibration-rotation  $A_2^3$  et  $A_1^3$ , avec une précision meilleure que 100 Hz. De même, les écarts en fréquence entre composantes  $|F-J|=3/2$  (peu résolues) sont identiques avec la même précision. (Les écarts entre doublets  $|F-J| = 1/2$  et  $3/2$ , de l'ordre de 1845 kHz n'ont pas été mesurés avec la même précision).

### 3.5.3 PREMIERE OBSERVATION DE LA STRUCTURE HYPERFINE MAGNETIQUE DANS LE SPECTRE INFRAROUGE DE L'AMMONIAC [113]

Nous reproduisons ci-dessous, la lettre récemment soumise pour publication au Journal de Physique. Un certain nombre d'autres transitions sont accessibles avec un laser guide d'ondes à  $\text{CO}_2$  (et ses diverses variétés isotopiques), ce qui devrait permettre une étude détaillée de la structure dipolaire magnétique de cette molécule. Celle-ci apparaît seule dans le cas de la molécule  $^{15}\text{NH}_3$ , tandis qu'elle est associée à une structure quadrupolaire électrique dans le cas de  $^{14}\text{NH}_3$ .



PREMIERE OBSERVATION DE LA STRUCTURE HYPERFINE  
MAGNETIQUE DANS LE SPECTRE INFRAROUGE DE L'AMMONIAC

Ch. Salomon, Ch. Chardonnet, A. Van Lerberghe, Ch. Bréant  
et Ch. J. Bordé.

Laboratoire de Physique des Lasers  
associé au CNRS N° 282  
Université Paris-Nord  
Avenue J.-B. Clément  
93430 Villetaneuse  
France

Titre en Anglais :

FIRST OBSERVATION OF A MAGNETIC HYPERFINE  
STRUCTURE IN THE INFRARED SPECTRUM OF AMMONIA

RESUME EN FRANCAIS

Nous présentons la première observation expérimentale, par spectroscopie de saturation, de la structure hyperfine magnétique dans le spectre infrarouge de l'ammoniac. Le spectre de la transition as R(2,0) de la bande  $\nu_2$  de  $^{15}\text{NH}_3$ , en quasi-coïncidence avec la raie 10R42 du laser à  $\text{CO}_2$ , a été enregistré avec une demi-largeur de raie de 2 kHz, limitée par le temps de vol des molécules à travers le faisceau laser. Ce spectre s'est avéré très sensible à un champ magnétique extérieur de sorte que le champ terrestre a dû être compensé.

RESUME EN ANGLAIS

We give the first experimental observation of a magnetic hyperfine structure in the infrared spectrum of ammonia, through saturation spectroscopy. The  $\nu_2$  as R(2,0) transition of  $^{15}\text{NH}_3$  in close coincidence with the 10R42  $\text{CO}_2$  laser line has been recorded with a 2 kHz half-width, which was limited by the molecular transit time across the laser beam. The observed spectrum appeared to be very sensitive to an external magnetic field so that the earth field had to be compensated.

Dans le cadre d'un programme d'étude de structures hyperfines et superfines de nombreuses molécules, nous présentons la première observation expérimentale d'une structure hyperfine magnétique dans la bande  $\nu_2$  de la molécule d'ammoniac.

Dans le passé, il a déjà été possible de mettre en évidence la dépendance vibrationnelle de la constante d'interaction hyperfine quadrupolaire électrique dans la bande  $\nu_2$  [1] et plus récemment dans la bande  $2\nu_2$  [2] de  $^{14}\text{NH}_3$ . De telles observations nécessitaient un pouvoir de résolution de quelques dizaines de kHz. L'observation d'une structure hyperfine magnétique requiert une résolution de l'ordre du kilohertz ( $\approx 3 \times 10^{-8} \text{ cm}^{-1}$ ).

Cette structure hyperfine magnétique a été observée à l'aide du spectromètre infrarouge de Villetaneuse décrit dans les références [3 - 6]. Celui-ci est composé essentiellement de deux lasers à  $\text{CO}_2$ , contrôlés en fréquence, associés à deux cuves d'absorption qui permettent d'utiliser les techniques classiques d'absorption saturée.

Le premier laser à  $\text{CO}_2$ , fonctionnant à basse pression est stabilisé en fréquence sur une raie de saturation moléculaire et sert de référence de fréquence. En particulier, l'asservissement en fréquence avec une raie de la molécule  $\text{OsO}_4$  comme référence, a déjà permis d'obtenir une pureté spectrale de l'ordre de 10 Hz, et une stabilité à long terme meilleure que  $10^{-13}$  sur des temps typiques d'enregistrement de plusieurs minutes. Le second laser à  $\text{CO}_2$  est décalé en fréquence par rapport au précédent, à l'aide d'un verrouillage en phase du battement de ces deux lasers sur la fréquence très stable d'un synthétiseur radio-fréquence. Cette boucle d'asservissement permet à la fois de transférer la stabilité à court terme et à long terme du laser de référence au laser décalé et d'effectuer un balayage en fréquence parfaitement linéaire grâce à la commande du synthétiseur par ordinateur. Le faisceau du laser accordable, est alors agrandi à un diamètre  $2w_0 = 8 \text{ cm}$  et envoyé dans une grande cuve d'absorption (longueur 18 m, diamètre 70 cm), où il vient sonder l'absorption des molécules sur un trajet de 108 m. Le défaut de planéité des fronts d'ondes est inférieur à  $\lambda/10$  à  $10 \mu\text{m}$ . A très basse pression ( $\approx 10^{-5} \text{ Torr}$ ) la largeur de raie n'est plus limitée que par le temps fini d'interaction des molécules avec le champ laser, ce qui permet d'obtenir une demi-largeur de raie à mi-hauteur de 650 Hz avec une molécule lourde telle que  $\text{OsO}_4$ , mais défavorise une molécule légère telle que  $\text{NH}_3$ . L'élargissement dû au temps de vol des molécules à travers le faisceau s'élève dans ce cas à 1,8 kHz (demi-largeur à mi-hauteur).

Notre choix pour la première mise en évidence de la structure hyperfine magnétique de l'ammoniac a porté sur la transition  $asR(2,0)$  dans la bande  $\nu_2$  de  $^{15}\text{NH}_3$  en quasi-coïncidence avec la raie  $10R(42)$  du laser à  $\text{CO}_2$ . Nous observons cette raie de  $^{15}\text{NH}_3$  à  $988.6484 \text{ cm}^{-1}$  (en bon accord avec les valeurs données dans les références 7 et 8), soit à environ + 53 MHz du centre de la raie  $R(42)$  de sorte qu'elle n'est accessible qu'à l'aide d'un laser guide d'ondes dont la plage d'oscillation peut s'étendre sur plusieurs centaines de MHz. Nous n'avons pas cherché, au cours de cette étude, à mesurer la fréquence absolue de cette raie avec précision, ce qui ne poserait aucun problème en cas de nécessité.

Pour cette expérience sur  $^{15}\text{NH}_3$ , nous avons utilisé comme référence de fréquence une raie de saturation de la molécule  $\text{C}_2\text{F}_2\text{Cl}_2$ , présentée sur la Fig. 2. En dépit du médiocre rapport signal sur bruit obtenu sur cette raie ( $200/\sqrt{\text{Hz}}$ ) il a été possible d'observer des largeurs de raie sur  $^{15}\text{NH}_3$  de l'ordre de 2 kHz (HWHM) grâce à l'excellente stabilité intrinsèque du laser de référence.

Etant donné que les 2 composantes de recul sont distantes de 216 Hz, il est remarquable d'observer une largeur de raie aussi proche de la limitation imposée par le temps de vol. C'est là une manifestation de l'affinement des raies dû à la contribution anormale des molécules de vitesse lente, au signal d'absorption saturée [9].

La figure 1 a. présente le spectre obtenu à la plus haute résolution, avec une pression dans la cuve d'absorption de  $1,5 \times 10^{-5}$  Torr. L'ensemble de la structure s'étend sur une centaine de kiloHertz. La reproductibilité des positions relatives des diverses résonances était meilleure que la centaine de Hertz d'un enregistrement à l'autre. Nous avons noté une grande sensibilité du spectre au champ magnétique terrestre, aisément expliquée par les valeurs élevées des facteurs de Landé, conduisant à un effet Zeemann résiduel. Celui-ci est manifeste sur la Fig. 1 b où le champ terrestre n'est pas compensé, tandis que la compensation du champ magnétique terrestre est réalisée à mieux que 10% dans le cas de la Fig. 1 a. La composante verticale,  $\vec{B}_v$ , est annulée par le champ créé par le courant de 2 bobines de Helmholtz. L'orientation Nord-Sud de la cuve d'absorption a permis une compensation de la composante horizontale,  $\vec{B}_h$ , grâce à un courant parcourant un solénoïde coaxial. Enfin, la Fig. 1 c. montre encore plus clairement l'influence d'un champ magnétique sur la structure : on observe une très nette réduction de l'intensité et de la résolution des composantes dans le cas où règne un champ de  $3 \vec{B}_v$  dans la cuve d'absorption.

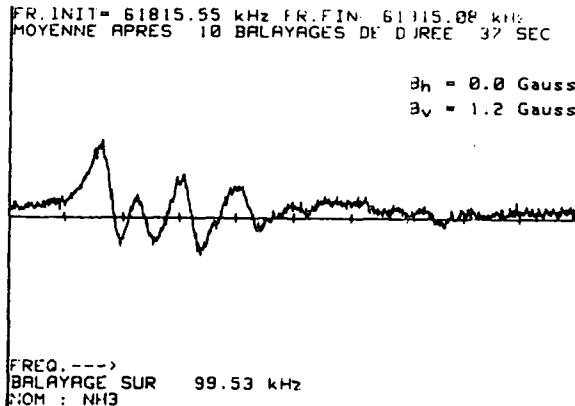
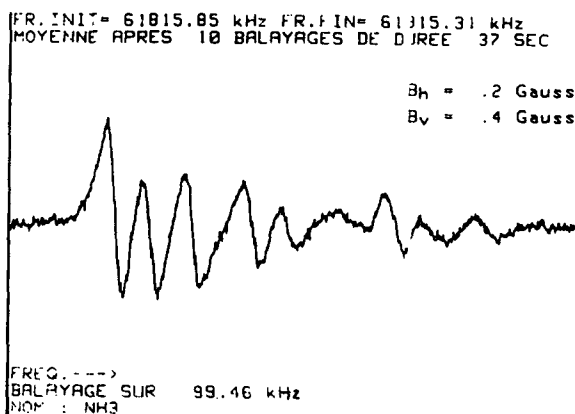
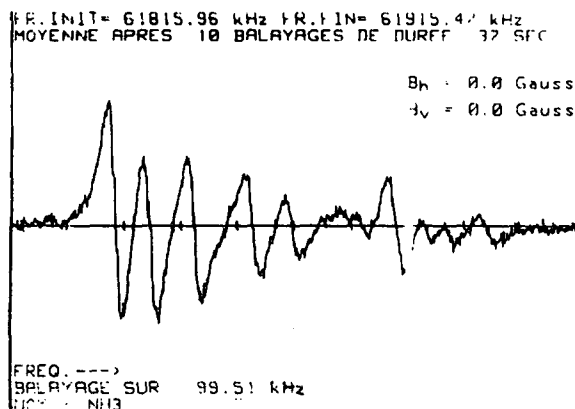
L'interprétation théorique de cette structure hyperfine magnétique est en cours, et a été considérablement facilitée par les nombreux travaux effectués sur l'état vibrationnel fondamental de l'ammoniac [10 - 12].

Un bon accord avec le spectre expérimental a d'ores et déjà été obtenu [13] avec une matrice hamiltonienne dont certains facteurs de phase ont dû être corrigés par rapport à celle utilisée par Kukulich [10].

Enfin une étude plus exhaustive des structures hyperfines de la bande  $\nu_2$  de  $^{15}\text{NH}_3$  et  $^{14}\text{NH}_3$  est actuellement poursuivie grâce à d'autres coïncidences de raies d'absorption de ces molécules avec les raies laser de  $\text{CO}_2$  et  $\text{N}_2\text{O}$ .

#### REFERENCES :

- [1] M. Ouhayoun, Ch. J. Bordé, et J. Bordé, Mol. Phys. 33, 597 (1977)
- [2] W.H. Weber et R.W. Terhune. J. Chem. Phys. 78, 6422 (1983).
- [3] Ch. J. Bordé, M. Ouhayoun, A. Van Lerberghe, Ch. Salomon, S. Avrillier, C.D. Cantrell et J. Bordé, Laser Spectroscopy IV, édité par H. Walther et K.W. Rothe, Springer Verlag, 1979, p. 142 - 153.
- [4] Ch. Salomon, Ch. Bréant, Ch. J. Bordé et R.L. Barger. J. Phys. (Paris) 42, Suppl. au n° 12 p. C8 - 3 (1981).  
A. Clairon, A. Van Lerberghe, Ch. Bréant, Ch. Salomon, G. Camy et Ch. J. Bordé. J. Phys. (Paris) 42, Suppl. au n° 12 p. C8 - 127 (1981).
- [5] Ch. J. Bordé, Rev. du Cethedec. Ondes et signal, NS 83-1 (1983), p. 1 - 118
- [6] Ch. Salomon, Ch. Bréant, A. Vanlerberghe, G. Camy et Ch. J. Bordé, Appl. Physics B 29, 153 (1982).
- [7] V.A. Job, N.D. Patel, R. D'Cunha et V.B. Kartha, J. Mol. Spectrosc. 101, 48 (1983).
- [8] L. Henry, A. Valentin, R. D'Cunha, S. Urban et K. Narahari Rao, 39<sup>th</sup> Symposium on Molecular Spectroscopy, Columbus (1984).
- [9] Ch. J. Bordé, J.L. Hall, C.V. Kunasz, D.G. Hummer, Phys. Rev. A 14, 263 (1976).
- [10] S.G. Kukulich, Phys. Rev. 156, 83-92, 1967.
- [11] S.G. Kukulich, Phys. Rev. 172, 59-63, 1968.
- [12] J.T. Hougen, J. Chem. Phys. 57, 4207 - 4217, 1972.
- [13] Ch. J. Bordé, Ch. Chardonnet et J. Bordé, à paraître.



**Figure 1 :** (a) Spectre en dérivée première de la raie  $sR(2,0)$  de la bande  $v_2$  de  $^{15}\text{NH}_3$  - fréquence de modulation : 750 Hz - Pression :  $1,5 \times 10^{-3}$  Torr - Intensité laser : 3uW - Constante de temps : 30 ms. Dix balayages de durée 37 secondes ont été additionnés. Le champ magnétique dans la cellule d'absorption est réduit en dessous du dixième de la valeur du champ magnétique terrestre. La largeur de raie (2,1 kHz HWHM) est essentiellement limitée par le temps de vol des molécules à travers le faisceau de diamètre  $2w_0 = 8$  cm. Les élargissements par pression et par modulation sont inférieurs à 500 Hz.

(b) Mêmes conditions que (a), mais le champ magnétique terrestre n'est pas compensé. Noter l'élargissement des résonances, plus marqué sur la droite du spectre.

(c) Mêmes conditions que (a). Le champ magnétique dans la cellule est vertical et vaut 3 fois la composante verticale du champ terrestre.

FR.INIT= 61788.51 kHz FR.FIN= 61943.08 kHz  
MOYENNE APRES 3 BALAYAGES DE DUREE 37 SEC

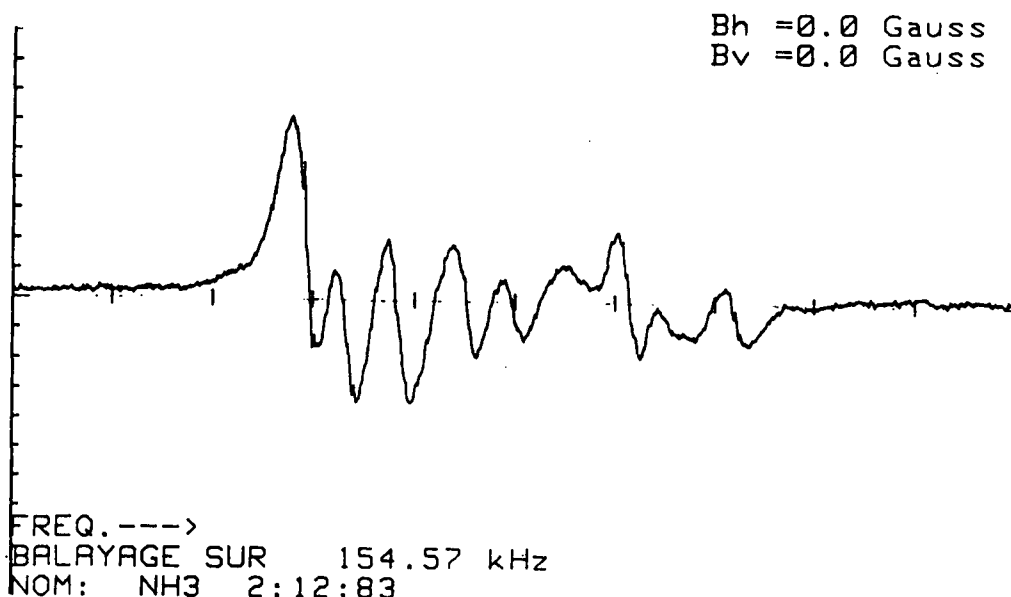


Figure 3.5.13 - Raie as R(2,0) de  $^{15}\text{NH}_3$  en champ laser fort (0,3 mW) faisant apparaître de très faibles transitions sur la droite du spectre. La pression dans la cuve est de l'ordre de  $5 \times 10^{-5}$  Torr.

RAIE DE  $\text{C}_2\text{F}_2\text{Cl}_2$  A ENVIRON -9 MHz  
DU CENTRE DE  $\text{CO}_2$  : 10 R(42)



FREQUENCES CROISSANTES --->

FIGURE 3.5.14

Spectre en dérivée première de la raie d'absorption de la molécule  $\text{C}_2\text{F}_2\text{Cl}_2$  utilisée pour stabiliser la fréquence du laser de référence. Cette raie, située à  $988.6463 \text{ cm}^{-1}$ , est enregistrée à l'aide d'un laser à  $\text{CO}_2$  libre, avec une pression de  $2 \times 10^{-3}$  Torr dans la cuve d'absorption - Constante de temps : 30 ms. La structure s'étend sur environ 500 kHz et le laser de référence était verrouillé sur la composante centrale de ce triplet à l'aide d'une boucle d'asservissement utilisant l'harmonique 3 du signal de saturation modulé à 18 kHz.

## 3.6 LES RÉSULTATS MÉTROLOGIQUES

### 3.6.1 INTRODUCTION

D'un point de vue spectroscopique, il ne suffit pas de résoudre des structures au niveau du kHz; il est également essentiel de connaître la fréquence absolue de chacune des transitions observées. La spectroscopie laser moderne est en effet une spectroscopie de fréquences (et non plus de nombres d'ondes), et une calibration absolue des spectres enregistrés nécessite un raccordement à l'étalon primaire de temps et fréquences : l'horloge à césium à 9 GHz.

Par ailleurs, comme il ressort du tableau 3.1 les variétés isotopiques de la molécule  $\text{OsO}_4$  sont particulièrement favorables à une stabilisation en fréquence d'un laser  $\text{CO}_2$  (ou  $\text{N}_2\text{O}$ ) avec une excellente reproductibilité et exactitude. Les bandes d'absorption fortes ( $\nu_3$ ) de  $^{189}\text{OsO}_4$ ,  $^{190}\text{OsO}_4$ ,  $^{192}\text{OsO}_4$ , recouvrent la bande à  $10,4 \mu\text{m}$  du laser  $\text{CO}_2$  et pour chaque raie du  $\text{CO}_2$ , on obtient plusieurs résonances d'absorption saturée particulièrement étroites (quelques kHz), exemptes de structure hyperfine et pour lesquelles l'effet Doppler du second ordre (3 Hz), l'effet de recul (15 Hz) et le déplacement par la pression sont très faibles et bien connus. (Voir Fig. 3.6.1).

C'est pourquoi, dans une première étape, réalisée par une équipe soviétique, l'une des raies de saturation de  $\text{OsO}_4$  sur la raie P(14) du laser  $\text{CO}_2$  a été reliée directement à l'horloge à césium avec une précision de l'ordre du kHz [148]. Tout récemment, une seconde raie de  $\text{OsO}_4$  a été également mesurée de façon absolue par rapport à l'horloge à césium, au Laboratoire Primaire Temps/Fréquences (L.P.T.F.), avec une précision encore meilleure  $\pm 45 \text{ Hz}$  ( $1\sigma$ ). Il s'agit d'une raie en quasi-coïncidence avec la raie R(10) de  $\text{CO}_2$  dont la fréquence est donnée à  $29\,054\,057\,446\,660 \text{ Hz}$  ( $\pm 45 \text{ Hz}$ ). Cette très faible incertitude provient du soin apporté aux nombreuses boucles à verrouillage de phase et à la qualité du verrouillage en fréquence du laser à  $\text{CO}_2$  sur  $\text{OsO}_4$  [149].

Dans une seconde étape, réalisée au Laboratoire de Physique des Lasers en collaboration avec A. CLAIRON du L.P.T.F., nous avons mesuré les différences de fréquence entre résonances de  $\text{OsO}_4$  correspondant à différentes

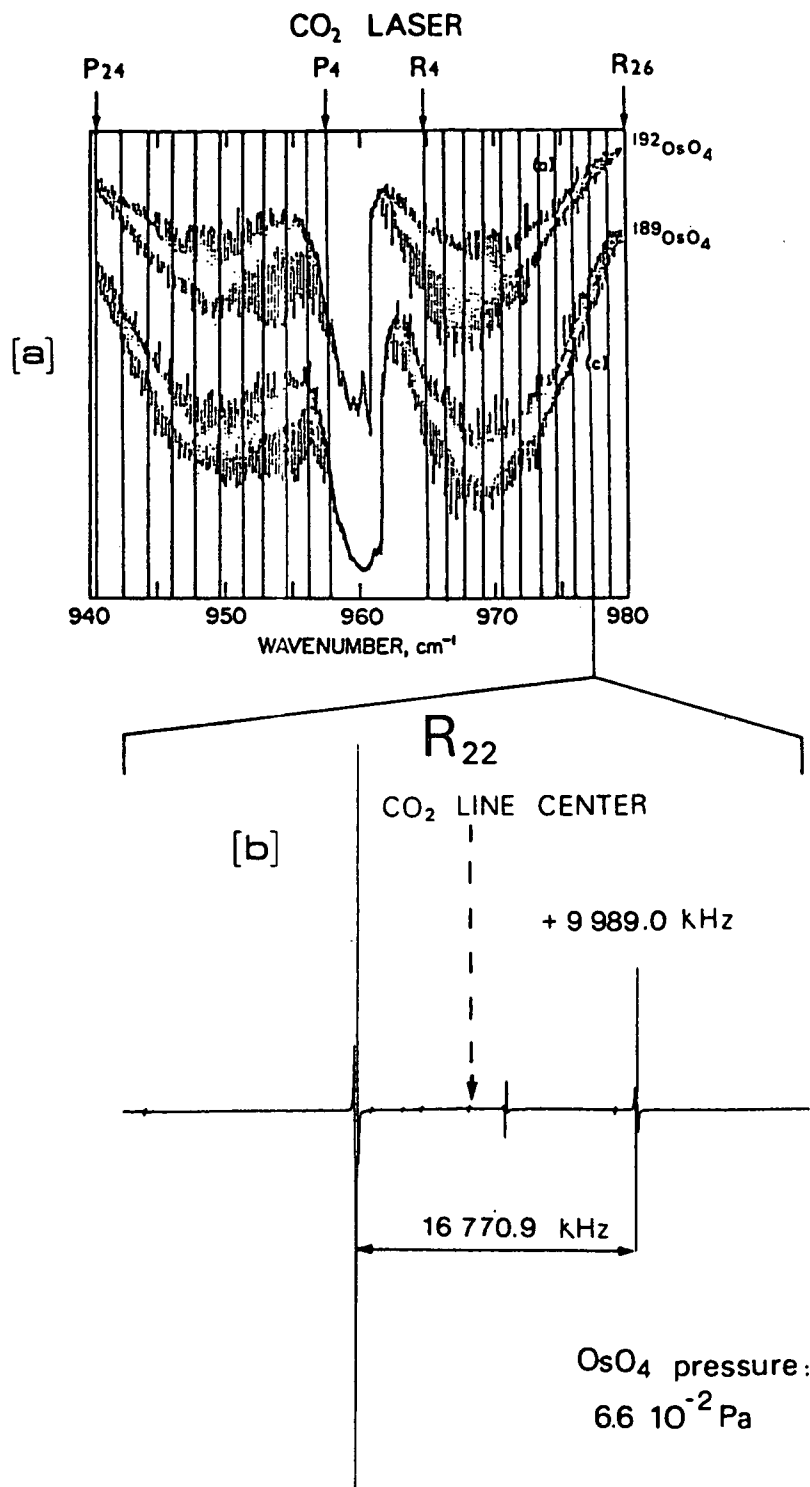


FIGURE 3.6.1

(a) Bande  $\nu_3$  de deux variétés isotopiques de  $\text{OsO}_4$  et grille de fréquences du laser à  $\text{CO}_2$  situées à l'intérieur de cette bande. Il s'agit de spectres par transformée de Fourier tirés de la référence [176]. Les raies de  $^{192}\text{OsO}_4$  sont exemptes de structure hyperfine alors que celles de  $^{189}\text{OsO}_4$  ont une structure quadrupolaire bien résolue [61]. (b) Exemple de résonances de saturation de  $\text{OsO}_4$  observées par détection de l'harmonique trois de la fréquence de modulation et utilisées comme raies de référence.



plages d'émission des lasers à  $\text{CO}_2$ , de façon à définir une grille d'étalons secondaires de fréquence (lasers stabilisés sur  $\text{OsO}_4$ ), qui s'étend sur plus d'un Terahertz.

### 3.6.2 PRINCIPE DE LA MESURE DES FREQUENCES

La méthode utilisée est un mélange direct des faisceaux (quelques mW) provenant des lasers L1 et L2 stabilisés indépendamment sur deux transitions distinctes de  $\text{OsO}_4$ , avec l'harmonique d'une onde millimétrique sur une diode MIM (W.Ni). Lorsqu'il s'agit de deux raies de  $\text{CO}_2$  adjacentes, l'onde millimétrique provient du rayonnement d'un klystron en bande X. La diode MIM génère un ensemble d'harmoniques du klystron dont l'une est suffisamment proche de la fréquence de battement entre les deux lasers pour permettre le verrouillage en phase du klystron sur le battement entre les lasers stabilisés. La fréquence du klystron est alors directement comptée. C'est ainsi qu'ont été mesurées les différences de fréquences entre raies de  $\text{CO}_2$  adjacentes, présentées sur la figure 3.6.3.

Dans le cas de raies de  $\text{CO}_2$  non adjacentes (dont la séparation a pu aller jusqu'à 339 GHz), c'est un klystron millimétrique (48-54 GHz) qui est verrouillé en phase sur le battement issu de la diode MIM et sa fréquence est déterminée à l'aide du klystron en bande X, lui-même verrouillé en phase sur le klystron millimétrique. Ce dernier montage est représenté sur la figure 3.6.2. Il a permis de raccorder les branches P et R des raies de  $\text{CO}_2$ , de réduire l'accumulation des incertitudes vers les extrémités de la grille des fréquences et de faire une vérification directe des mesures entre raies de  $\text{CO}_2$  adjacentes.

La stabilisation en fréquence des lasers L1 et L2 sur deux résonances de saturation de  $\text{OsO}_4$ , suivant la méthode décrite au paragraphe 2.3, a nécessité des précautions particulières en ce qui concerne l'exactitude. En effet, si les raies de saturation dans les cuves de référence sont symétriques (ou rendues symétriques au niveau de  $10^{-3}$  par un soigneux alignement optique), il n'en n'est pas de même pour les raies de saturation provenant de la grande cuve, pour des pressions comprises entre  $10^{-4}$  et  $10^{-3}$  Torr, où le rapport signal sur bruit est optimum. La forme de raie présente une asymétrie systématique prononcée qui provient de la courbure des fronts d'ondes

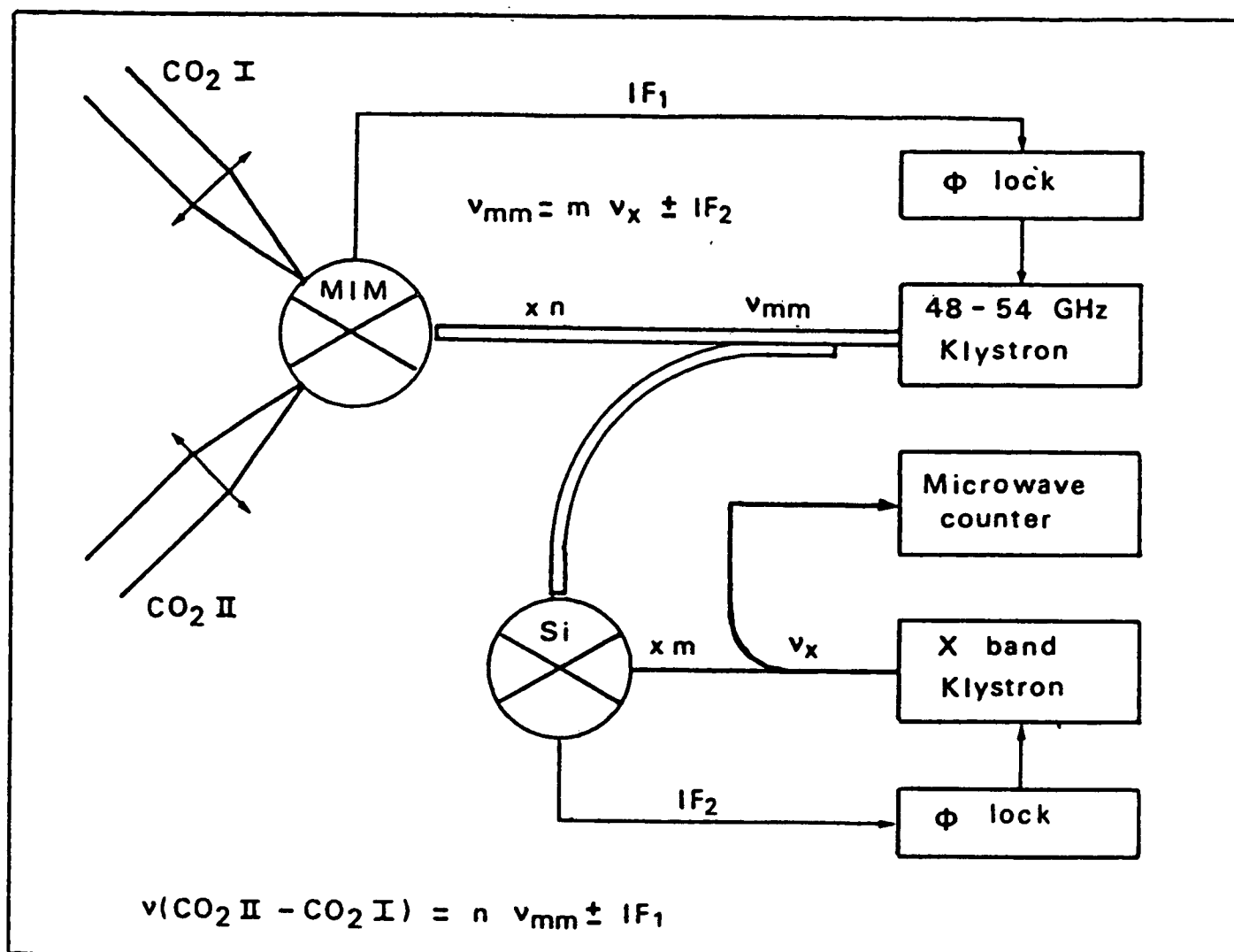


FIGURE 3.6.2

Schéma de principe du dispositif employé pour les mesures de fréquences de battement avec ses deux boucles à verrouillage de phase utilisées en conjonction avec un klystron millimétrique.  $IF_1$  et  $IF_2$  sont deux fréquences intermédiaires comprises entre 27 et 41 MHz.

dans la partie du télescope qui se trouve à l'intérieur de la grande cuve. En effet, la courbure des fronts d'ondes induit un déplacement de la résonance de saturation et donc une asymétrie de la raie si les faisceaux aller et retour ne sont pas d'intensités égales [ 40, 42 ].

Malgré la faible longueur (3 m) sur laquelle les faisceaux présentent une courbure prononcée, longueur à comparer aux 51 mètres contribuant au signal de saturation, cette portion du faisceau contribue notablement au signal car le paramètre de saturation y est plus important.

Nous avons constaté qu'à très forte pression ( $\leq 3 \times 10^{-3}$  Torr), ou à très haute résolution ( $\sim 10^{-5}$  Torr), les résonances de saturation redeviennent symétriques, en accord avec les théories développées dans les références [ 40 ] et [ 42 ].

Une étude détaillée du doublet P(39)  $A_1^2$  et  $A_2^3$  de  $^{192}\text{OsO}_4$ , où les deux composantes ont des intensités égales, nous a permis de déterminer le signe et la valeur du déplacement de la résonance. Dans un premier temps, nous avons mesuré avec précision la séparation entre les deux composantes du doublet, soit : 457,15 kHz ( $\pm 60$  Hz) en verrouillant successivement le même laser L1 sur les deux composantes, L2 restant asservi sur une autre transition. L'effet systématique est annulé sur la différence des fréquences. Puis, en verrouillant L1 sur une composante du doublet dans la grande cuve et L2 sur l'autre, dans la cuve de référence, nous avons pu chiffrer la valeur du déplacement lié à la courbure dans la grande cuve, en faisant varier dans de larges proportions, la pression, l'intensité du laser, et l'indice de modulation de fréquence. Nous avons trouvé que le laser L1 était verrouillé à - 600 Hz ( $\pm 400$  Hz) de la résonance moléculaire, avec un signe en accord avec les prédictions théoriques [ 40 ].

Par opposition, la raie de saturation dans les cuves de référence associées à L2, est hautement symétrique, et nous n'avons pas observé de variations supérieures à  $\pm 30$  Hz de la fréquence du battement entre les deux lasers stabilisés, lorsque nous avons fait varier les paramètres (pression, intensité et indice de modulation) de la résonance produite dans les cuves de référence.

### 3.6.3 RESULTATS ET DISCUSSION. LA GRILLE DE FREQUENCES DE REFERENCE RELIEE A L'HORLOGE A CESIUM [ 36, 37 ]

La grille présentant l'ensemble des fréquences mesurées est reportée sur les figures 3.6.3 et 3.6.4. L'incertitude portant sur chaque mesure est de  $\pm 0,9$  kHz ( $1 \sigma$ ) et résulte de l'addition des valeurs quadratiques suivantes:

- La dispersion statistique des mesures s'élève à  $\pm 0,7$  kHz. Elle comprend : 1) l'échange des bandes latérales utilisées pour le verrouillage en phase du klystron sur le battement entre les deux lasers; 2) des variations importantes de l'indice de modulation des deux lasers; 3) des variations de pression de  $\text{OsO}_4$  dans les deux cuves; 4) la permutation des lasers et les ajustements optiques.

- Le déplacement de  $+ 0,6$  kHz ( $\pm 0,4$  kHz) de la résonance vers le bleu dû à la courbure des fronts d'ondes dans la partie convergente-divergente du télescope dans la grande cuve.

- Une incertitude de  $\pm 2 \times 10^{-10}$  qui provient des dérives possibles de la base de temps des compteurs entre deux calibrations par rapport à l'horloge à césium.

- L'effet des "offsets" électroniques, estimé à moins de  $\pm 0,2$  kHz.

La redondance des mesures permet de vérifier la cohérence des mesures individuelles entre elles, en utilisant plusieurs trajets à l'intérieur de la grille. Par exemple, la distance P(4)-P(14) par deux trajets ne diffère que de  $1,5$  kHz, bien en dessous de l'incertitude calculée de  $\pm 2,3$  kHz. L'incertitude maximum sur toute la grille entre R 26 et P 22 n'est que de  $3,3$  kHz ( $1 \sigma$ ).

Enfin, la fréquence absolue de la raie de  $\text{OsO}_4$  sur R(10) de  $\text{CO}_2$  déduite de la mesure absolue soviétique et de notre grille, n'est qu'à  $1,24$  kHz de la valeur mesurée au L.P.T.F. également de façon absolue.

Le tableau 3.6.1 rassemble les résultats précédents et attribue une fréquence absolue à chacune des raies de  $\text{OsO}_4$  mesurées, en prenant pour référence absolue de fréquence la raie de  $^{192}\text{OsO}_4$  en coïncidence avec P14 de  $\text{CO}_2$ .

**Grille résultante : différences de fréquence  
mesurées en kilohertz entre résonances de  
saturation de  $\text{OsO}_4$**

- 282 -

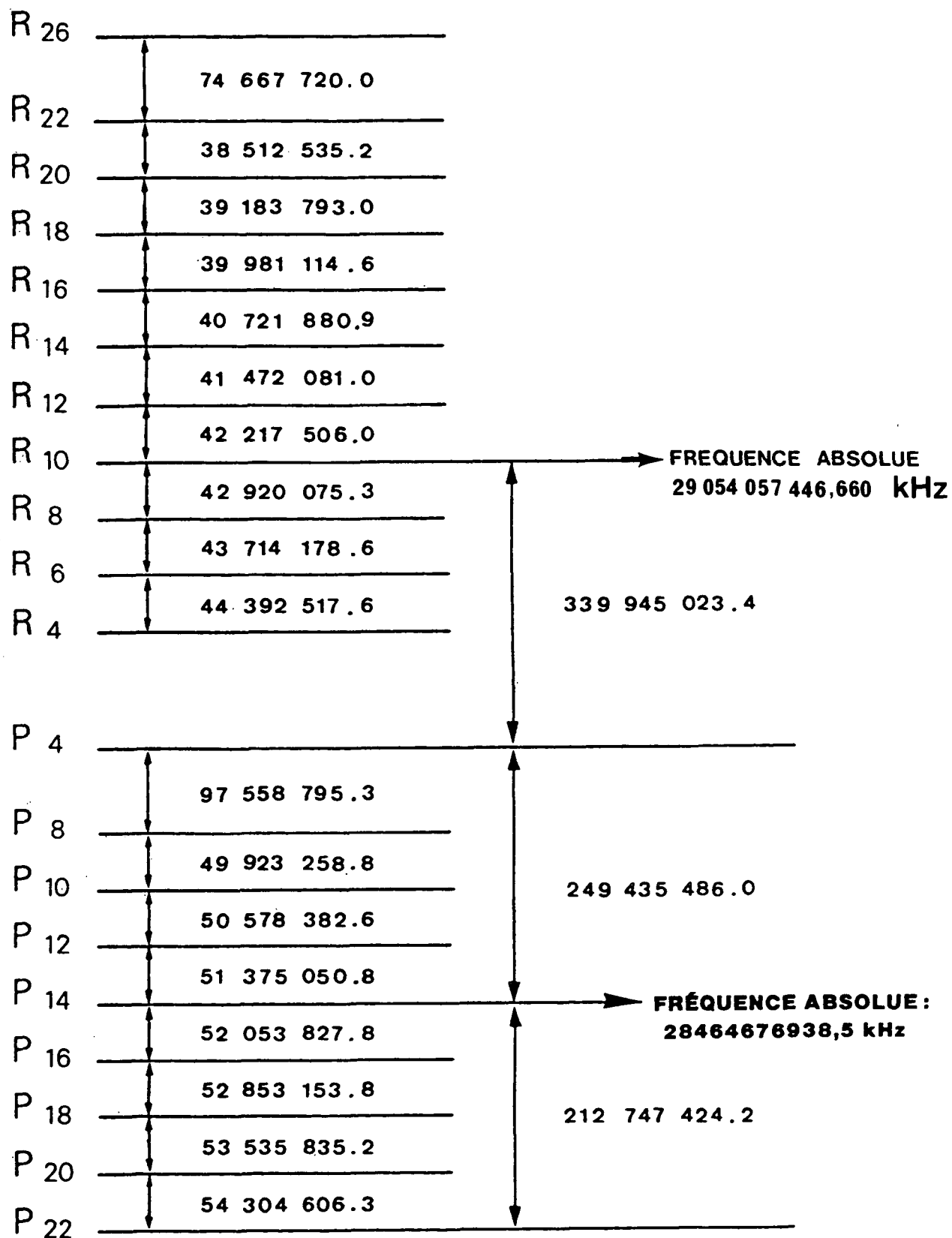


FIGURE 3.6.3

**GRILLE RESULTANTE DES RAIES DE REFERENCE DE  $\text{OsO}_4$  ET DIFFERENCES  
DE FREQUENCES MEASUREES EN KILOHERTZ**

La fréquence absolue de la raie de  $\text{OsO}_4$ , en coïncidence avec la raie P(14) de  $\text{CO}_2$ , issue de la référence [148], ou la fréquence de la raie de  $\text{OsO}_4$  en coïncidence avec R(10) de  $\text{CO}_2$ , issue de la référence [149], permettent d'attribuer une fréquence absolue à chacune des autres raies mesurées.

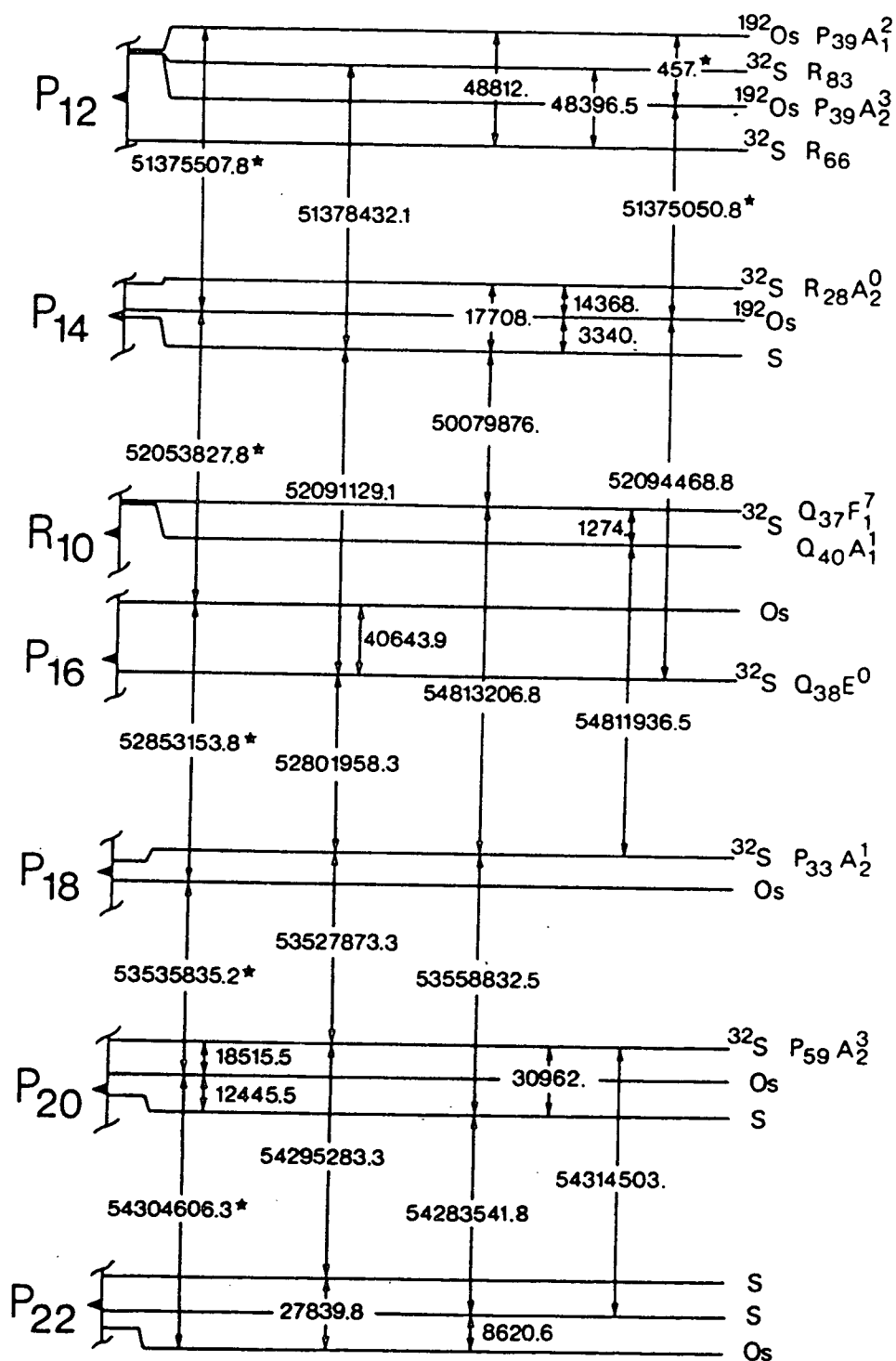


FIGURE 3.6.4

Différences de fréquences entre raies de  $\text{OsO}_4$  et  $\text{SF}_6$  utilisées pour calibrer de façon absolue les spectres de  $\text{SF}_6$ . Seules les mesures où figure une étoile présentent une incertitude de 1 kHz<sup>6</sup>. La structure hyperfine des raies de  $\text{SF}_6$  impose une incertitude de l'ordre de 3 kHz sur les autres mesures.

TABLEAU 3.6.1

CO <sub>2</sub> laser line	Measured frequency dis- tance in kHz to P(14) reference line	Absolute frequency in kHz(reference <sup>192</sup> OsO <sub>4</sub> )	Frequency distance to CO <sub>2</sub> in MHz
P <sub>22</sub>	-212 747 424.2(.9)	28 251 929 514.3	-12.1
P <sub>20</sub>	-158 442 817.9(1.4)	28 306 234 120.6	+9.3
P <sub>18</sub>	-104 906 981.6(1.4)	28 359 769 956.9	-3.8
P <sub>16</sub>	-52 053 827.8(1.)	28 412 623 110.7	+33.4
P <sub>14</sub>	Absolute reference	28 464 676 938.5	+3.2
P <sub>12</sub>	+51 375 050.8(1.)	28 516 051 989.3	+25.4
P <sub>10</sub>	+101 953 433.3(1.4)	28 566 630 371.9	-18.8
P <sub>8</sub>	+151 876 690.7(1.4)	28 616 553 629.2	+11.9
P <sub>4</sub>	+249 435 486.0(.9)	28 714 112 424.5	-25.3
R <sub>4</sub>	+458 353 737.9(2.3)	28 923 030 676.4	-15.7
R <sub>6</sub>	+502 746 255.5(2.)	28 967 423 194.0	-33.9
R <sub>8</sub>	+546 460 434.1(1.7)	29 011 137 372.6	+4.4
R <sub>10</sub>	+589 380 509.4(1.4)	29 054 057 447.9	-15.2
R <sub>12</sub>	+631 598 015.4(1.7)	29 096 274 953.9	+0.6
R <sub>14</sub>	+673 070 096.4(2.)	29 137 747 034.9	+10.9
R <sub>16</sub>	+713 791 977.3(2.3)	29 178 468 915.8	+13.2
R <sub>18</sub>	+753 773 091.9(2.5)	29 218 450 030.4	+19.4
R <sub>20</sub>	+792 956 884.9(2.7)	29 257 633 823.4	-24.7
R <sub>22</sub>	+831 469 420.0(2.8)	29 296 146 358.5	+10.0
R <sub>26</sub>	+906 137 139.9(3.)	29 370 814 078.5	-15.5

DIFFERENCES DE FREQUENCES ENTRE RAIES DE OsO<sub>4</sub> ET FREQUENCE ABSOLUE DE  
CES RAIES, AYANT CHOISI POUR ORIGINE LA VALEUR DE 28 464 676 938,5 kHz  
REPORTEE DANS LES REFERENCES [148] POUR LA RAIE DE OsO<sub>4</sub> SUR P(14) DE CO<sub>2</sub>.

#### 3.6.4 CONCLUSION

Bien que ces résultats soient environ trente fois plus précis que la grille de marqueurs de fréquences fondée sur la fluorescence saturée de  $\text{CO}_2$  ([96] et Fig. 3.6.5) que nous utilisions auparavant, il faut les considérer comme tout à fait préliminaires. En effet, l'incertitude actuelle (0,9 kHz) pourrait aisément être réduite d'au moins deux ordres de grandeur. La limitation essentielle provient de l'asymétrie de la raie de  $\text{OsO}_4$  dans la grande cuve qui fut avant tout conçue pour la très haute résolution. Pour les applications métrologiques, un télescope extérieur à la cuve (du même type que le système existant pour le laser de référence) éviterait toute courbure dans la région d'interaction. Cette grille pourrait également être étendue beaucoup plus loin dans la région spectrale de 9 à 11  $\mu\text{m}$  en utilisant de nombreuses autres molécules, associées aux lasers conventionnels ou guides d'ondes utilisant les variétés isotopiques de  $\text{CO}_2$  (présentées sur la figure 2.1.3) ou de  $\text{N}_2\text{O}$ . Par exemple,  $\text{RuO}_4$ , couvre la région 900-940  $\text{cm}^{-1}$ , tandis que  $\text{XeO}_4$  s'étend de 810 à 900  $\text{cm}^{-1}$ . Cette grille sert désormais au calage en fréquence de tous nos spectres et s'est avérée également utile pour calibrer les spectres par transformée de Fourier.

D'autre part, comme nous l'avons montré au Chapitre 2, la variance d'Allan des lasers à  $\text{CO}_2$  conventionnels, stabilisés en fréquence sur des raies de saturation de  $\text{OsO}_4$  atteint  $4 \times 10^{-14}$  pour  $T = 30$  secondes. Ces mesures préliminaires laissent raisonnablement entrevoir la possibilité de franchir le palier de  $1 \times 10^{-14}$ .

La possibilité d'asservir le laser à gaz carbonique sur les résonances étroites de  $\text{OsO}_4$  avec une exactitude meilleure que  $10^{-13}$  devrait dans l'avenir rendre cette source compétitive avec l'horloge à césium, en tant qu'étalon primaire de temps et de fréquence. A exactitude égale, il est clair qu'on a intérêt à avoir un étalon de fréquence de la plus grande fréquence possible pour atteindre cette exactitude au bout du temps le plus court possible. Associée à une chaîne de mesure de fréquence, cette source est aussi l'archétype de futures horloges optiques.

La récente définition du mètre à partir de la vitesse de la lumière nécessitera pour sa réalisation pratique l'existence d'une grille de fréquences optiques connues. Or, le laser à  $\text{CO}_2$  asservi, de par sa puissance et sa position dans la gamme des fréquences, a toujours joué un rôle clé pour la



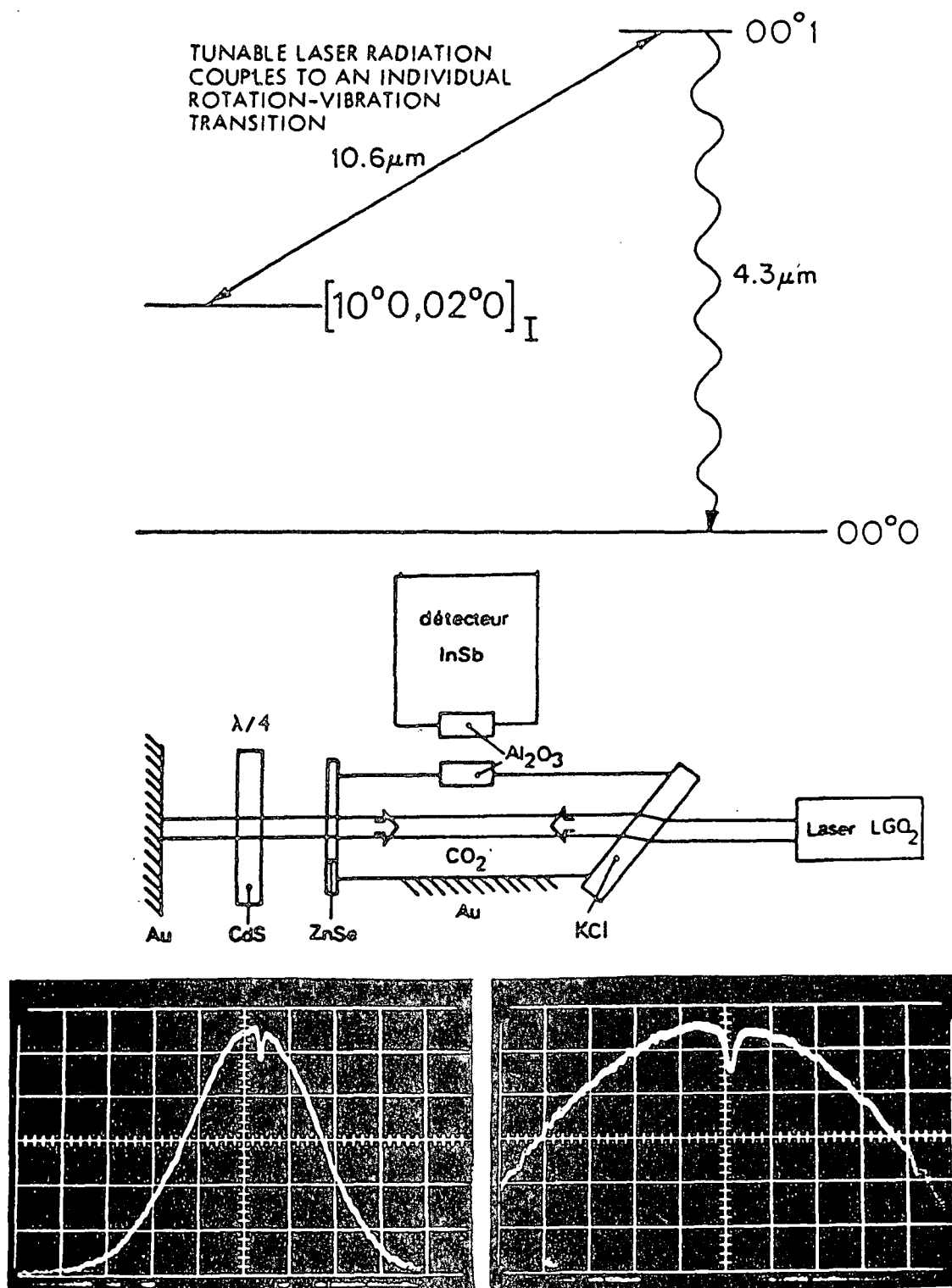


FIGURE 3.6.5

Principe et illustration de la technique de fluorescence saturée [96] permettant d'asservir un laser au centre des raies du gaz carbonique ou du protoxyde d'azote. Par détection de la lumière de fluorescence vers  $4,3\mu\text{m}$  au moyen d'un détecteur à InSb on suit la variation de population du niveau supérieur de la transition en interaction avec une onde laser stationnaire dans une cuve extérieure au laser. Cette population et donc le signal de fluorescence subissent une diminution lorsque les mêmes molécules interagissent simultanément avec les deux ondes de sens opposés ce qui se produit comme en absorption saturée lorsque l'onde laser est accordée au centre de la transition. Le laser utilisé étant un laser guide d'ondes l'ensemble du profil Doppler de la transition vers  $10\mu\text{m}$  peut être exploré. Le pic de fluorescence saturée apparaît comme une diminution du signal de fluorescence dont la largeur ( $\sim\text{MHz}$ ) est dominée par l'effet des collisions (pression  $\sim 40\text{ mTorr}$ ) et surtout par la saturation (puissance du laser  $\sim\text{Watt}$ ). Par modulation de fréquence du laser on obtient un signal d'erreur qui permet d'asservir le laser au centre du pic de fluorescence saturée.

synthèse et la mesure des fréquences optiques. Par exemple, à partir de la grille des marqueurs que nous avons établie dans la région spectrale de  $10\text{ }\mu\text{m}$ , il est facile, par simple doublage de fréquence dans des cristaux de  $\text{CdGeAs}_2$ , de fabriquer une grille équivalente dans la région de  $5\text{ }\mu\text{m}$  avec un niveau de puissance continue de plusieurs milliwatts. Plus généralement par combinaison de deux fréquences du  $\text{CO}_2$ , on peut couvrir toute la gamme 1-150 THz. Par mélange avec un laser visible dans un cristal non linéaire, il devrait être possible dans l'avenir de couvrir tout le domaine visible de fréquences de référence possédant l'exactitude du laser visible.

## CHAPITRE 4

### LES FRANGES DE RAMSEY SUR LE JET SUPERSONIQUE

## INTRODUCTION

Parallèlement à l'effort entrepris pour observer des franges de Ramsey très étroites dans la grande cuve d'absorption, nous avons tenté des expériences de franges de Ramsey sur un jet supersonique de  $\text{SF}_6$ .

Tous les développements du spectromètre à très haute résolution, présentés au Chapitre 2, (stabilisation de la fréquence des lasers au niveau de la dizaine de Hz, boucle à verrouillage de phase pilotée par ordinateur, et contrôle de la qualité des fronts d'ondes) se sont avérés également indispensables dans les expériences sur jet supersonique qui vont être décrites maintenant.

Le jet supersonique résulte d'une détente adiabatique dans une tuyère de faible diamètre ( $\sim 30$  à  $100 \mu\text{m}$ ) qui procure un caractère unidirectionnel prononcé et peut produire un refroidissement rotationnel très important ( $T_{\text{rot}} \sim 10 \text{ K}$ ). La fonction de partition, donnée au paragraphe (3.3.3) indique alors qu'une fraction tout à fait notable des molécules du jet peut participer à une transition donnée, s'il s'agit d'une raie de J faible. A titre d'exemple, à 10 K, 1% des molécules du jet de  $\text{SF}_6$  contribue à la transition  $P(4)F_1$ , alors que ce chiffre ne vaut que  $3,4 \times 10^{-5}$  à température ambiante.

Le second avantage important du jet supersonique sur une cuve ou sur un jet thermique est la bonne monochromaticité des vitesses longitudinales des molécules du jet (de l'ordre de 10 à 13% dans le jet construit au Laboratoire, et même 1 à 2% dans les jets développés au C.E.A. par R. CAMPARGUE, où la pression amont peut s'élever à plusieurs dizaines d'atmosphères [150]).

Le problème posé pour la spectroscopie infrarouge sur jet était un problème de détection de l'énergie absorbée. Malgré une intensité de l'ordre de  $10^{18}$  molécules par stéradian et par seconde, la très faible épaisseur optique du jet rend très difficile la détection de l'énergie absorbée sur le faisceau laser lui-même, méthode que nous avons utilisée au chapitre précédent pour la détection des signaux de saturation dans la grande cuve. Nous montrerons au paragraphe 4.4, que ce signal d'absorption est cependant détectable et conduit à un rapport signal sur bruit tout à fait respectable.

De même, la durée de vie très importante (dizaines de millisecondes) des niveaux de vibration-rotation des molécules ne permet pas d'utiliser

la fluorescence pour suivre la population du niveau excité. C'est pourquoi GOUGH et al. [151] ont imaginé de détecter l'énergie de vibration-rotation sur les molécules elles-mêmes grâce à un bolomètre placé sur le trajet du jet. Le bolomètre (semi-conducteur, supraconducteur, ou métallique) est un détecteur thermique. Frappé par les molécules du jet, il subit un échauffement produit par l'énergie cinétique et l'énergie interne (vibro-rotationnelle) de chaque molécule. Cette variation de température se traduira par une variation de résistance, qui, grâce à une polarisation convenable produira une variation de tension aux bornes du bolomètre, qui sera détectée et amplifiée. Les bolomètres semiconducteurs les plus sensibles fonctionnent à très basse température (4 K ou en-dessous) car la résistance d'un semiconducteur varie en  $\exp \delta/T$ ; par ailleurs, le bruit de rayonnement thermique et le bruit Johnson sont également fortement réduits à basse température. Enfin, la capacité calorifique du bolomètre y est plus faible, ce qui améliore son temps de réponse. Celui-ci est en effet une sérieuse limitation de ce type de détecteurs. Les temps de réponse typiques des bolomètres que nous avons utilisés, étaient supérieurs à quelques millisecondes, voire une dizaine de millisecondes. Cet inconvénient est contrebalancé par une détectivité théorique tout à fait remarquable qui peut s'élever à quelques  $10^{-13} \text{ W}/\sqrt{\text{Hz}}$ .

## 4.1 DESCRIPTION DE L'APPAREILLAGE

### 4.1.1 LE JET SUPERSONIQUE (Fig. 4.1.1)

Le jet utilisé dans ces expériences, dont l'appareillage a été réalisé à l'Université de Trente dans le cadre d'une collaboration franco-italienne, est produit par une détente supersonique à la sortie d'une tuyère de faible diamètre ( $\sim 50 \mu$ ). Il s'agit d'un jetensemencé (7 % de  $\text{SF}_6$  dans 93 % d'hélium), de façon à éviter les problèmes de condensation ou de formation de polymères et à obtenir un refroidissement important (gaz monoatomique). Cette détente supersonique a lieu dans une première chambre (P1 sur la Fig. 4.4.1) où la pression de travail est de quelques  $10^{-4}$  Torr. Cette chambre est pompée à l'aide d'une pompe secondaire à fort débit ( $\sim 3500 \text{ l/s}$ ) et est séparée de la chambre de mesure (ou d'interaction) par un écorceur. Cet écorceur joue

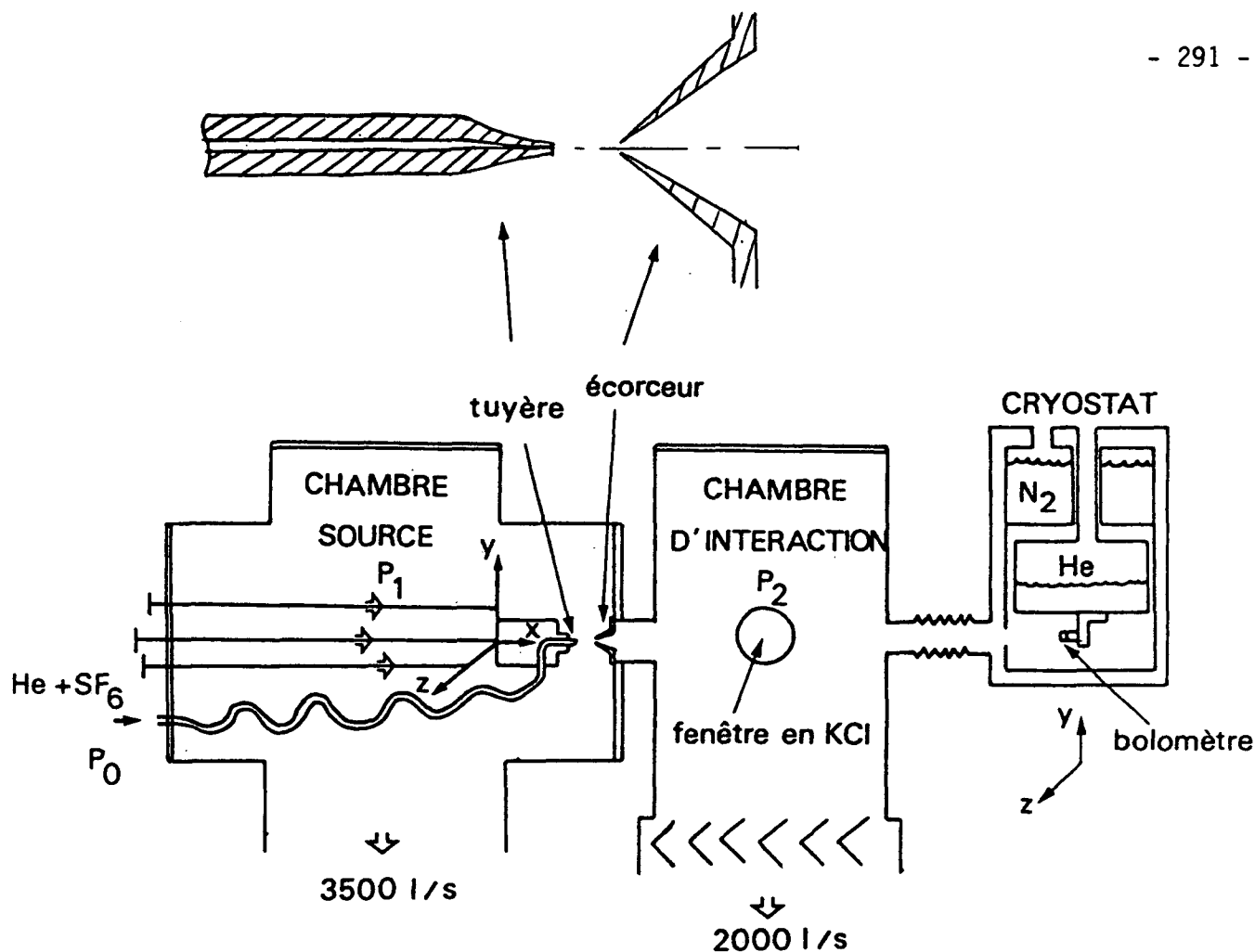


FIGURE 4.1.1

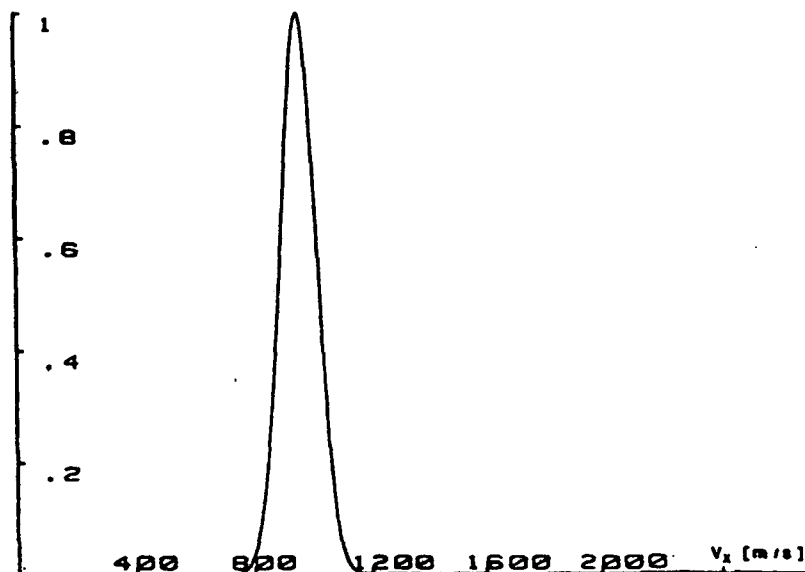
Schéma du jet supersonique équipé d'un bolomètre : chacune des deux chambres est pompée par une pompe à diffusion. La deuxième chambre est équipée d'un piège à azote et la première, d'un piège à eau. La pression de travail dans chacune des deux chambres est respectivement de quelques  $10^{-4}$  Torr et quelques  $10^{-6}$  Torr. Un modulateur (non représenté) permet de hacher le jet. Le bolomètre, situé à environ 50 cm de la tuyère, est placé à l'intérieur d'un cryostat à hélium. Le faisceau laser pénètre dans la chambre d'interaction par une fenêtre de KCl.

FIGURE 4.1.2

Distribution de vitesses des molécules de  $\text{SF}_6$  dans un jet supersonique (Intensité) :

Fonction  $v^3 \exp[-(v-u)^2/\alpha^2]$

avec  $u = 942$  m/s et  $\alpha = 85$  m/s.



le rôle de diaphragme capable de ne pas détruire le flux supersonique et permet de séparer la chambre de détente de la chambre de mesure où la pression résiduelle est beaucoup plus faible (vide différentiel). C'est dans cette seconde chambre qu'a lieu l'interaction avec le faisceau laser: les collisions entre les molécules du jet et le gaz résiduel y sont virtuellement absentes ( $P_2 \sim 2 \times 10^{-6}$  Torr).

La tuyère est réalisée à partir d'un capillaire en pyrex ( $\varnothing_{\text{int}} = 2$  mm,  $\varnothing_{\text{ext}} = 4$  mm) qui est étiré puis poli jusqu'à l'obtention du diamètre de sortie, soit environ 50  $\mu$ .

L'écorceur en acier inox, situé 1 cm en aval de la tuyère, est formé de deux cônes coaxiaux ( $\theta_{\text{int}} = 50^\circ$ ,  $\theta_{\text{ext}} = 60^\circ$ ) et présente une ouverture de 0,5 mm. Un système de réglages x, y, z sous vide, permet l'alignement de la tuyère par rapport à l'écorceur. Cet alignement se fait de façon préliminaire en cherchant la position de la tuyère pour laquelle la pression de la chambre de mesure est la plus élevée. En aval de l'écorceur, se trouve un modulateur à pales permettant de moduler le jet supersonique à basse fréquence (0-2 kHz).

L'intensité de ce jet supersonique est de l'ordre de  $10^{18}$  molécules de  $\text{SF}_6$  par stéradian et par seconde; la dispersion des vitesses longitudinales est de l'ordre de 10 à 13% (nombre de Mach  $\sim 14$ ) pour notre installation.

L'hélium assure une vitesse d'ensemble de l'ordre de 1000 m/s et fournit, à nombre de Mach donné, la plus faible dispersion des vitesses longitudinales possibles car c'est un gaz monoatomique ( $P V^\gamma = \text{cte}$  avec  $\gamma = 5/3$ ).

A titre d'exemple, la distribution de vitesses de  $\text{SF}_6$  dans un jet d'héliumensemencé à 5%, mesurée par une technique de temps de vol est de la forme :

$$v^3 \exp - \frac{(v-u)^2}{\alpha^2} \quad (4.1)$$

pour l'intensité du jet, avec  $u = 942$  m/s et  $\alpha = 85$  m/s, pour un diamètre de tuyère de 30  $\mu$ m et une pression amont de 4,5 bars absolus [152]. Cette distribution est représentée sur la figure (4.1.2).

#### 4.1.2 LE BOLOMETRE

Il s'agit d'une pastille circulaire ou rectangulaire de silicium dopé, de quelques millimètres de côté, placée dans un cryostat refroidi à l'hélium liquide (4 K). La figure 4.1.3 [154] présente quelques détails du montage : deux fils d'or très fins, de diamètre 10  $\mu\text{m}$ , sont soudés directement sur la pastille de silicium et sur deux fils de cuivre de diamètre 100  $\mu\text{m}$ . Ces fils d'or assurent une très faible conductivité thermique entre le bolomètre et le reste du cryostat. Les deux fils de cuivre, recouverts d'une fine couche d'isolant sont plaqués sur un support en cuivre en contact direct avec la paroi froide (4 K) du cryostat. Ils permettent la mesure de la tension apparaissant aux bornes du bolomètre. Tout l'environnement du bolomètre est maintenu à une température aussi basse que possible afin de diminuer le rayonnement thermique sur le bolomètre lui-même. Une succession de diaphragmes de la taille du bolomètre limite l'angle de vue des éléments non refroidis et laisse passer le jet moléculaire incident.

Le bolomètre est monté en série avec une résistance de charge, et polarisé par une pile à mercure (fig. 4.1.4 ). Pour optimiser les conditions de polarisation, on trace une courbe de charge caractéristique, telle que celle de la figure 4.1.4 , qui permet de déterminer la réponse en fonction de la tension de polarisation. Cette réponse est typiquement de l'ordre de quelques  $10^3$  à quelques  $10^4$  V/W à 4,2 K, et augmente sensiblement en pompant sur l'hélium. Par une mesure du bruit, on détermine la puissance équivalente au bruit (PEB) par :

$$\text{PEB} = \frac{\text{Bruit}(V/\sqrt{\text{Hz}})}{\text{Réponse}(V/W)}, \quad (4.2)$$

qui est typiquement de l'ordre de  $10^{-12}$  à  $10^{-13}$   $\text{W}/\sqrt{\text{Hz}}$ . (En fait dans les conditions réelles d'utilisation, on constate que cette PEB mesurée électriquement est augmentée par un facteur qui peut atteindre 10). L'apport de chaleur dû à l'énergie cinétique ou interne des molécules du jet entraîne une variation de  $V_B$ . Le signal obtenu est alors amplifié avec un gain de 1 000 par un amplificateur à pile de bruit très faible, et placé immédiatement à la sortie du cryostat.



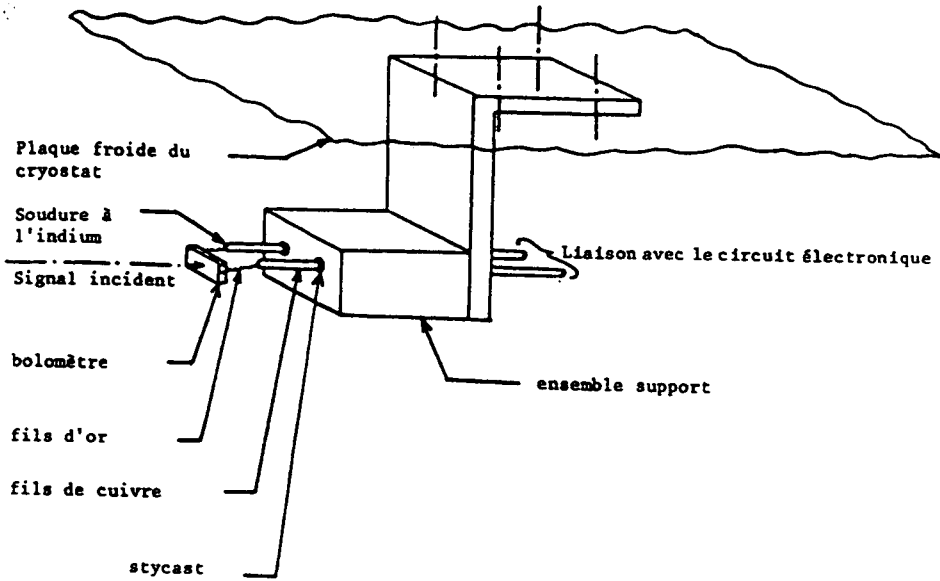


FIGURE 4.1.3

Schéma d'un bolomètre semi-conducteur dans son cryostat refroidi à l'hélium liquide.

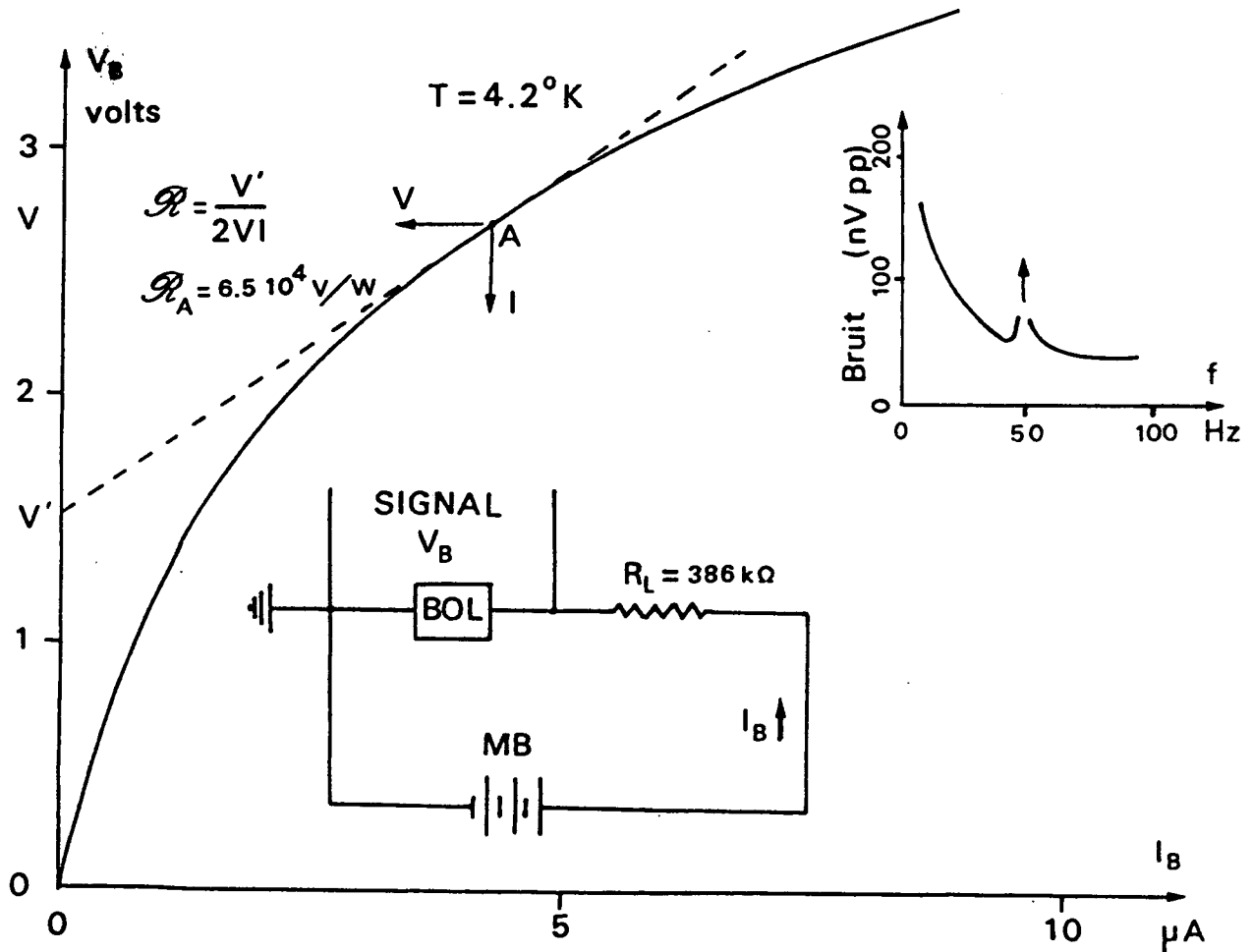


FIGURE 4.1.4

Montage électrique et courbe de charge caractéristique d'un bolomètre :  $R_L$  est une résistance de charge de quelques dizaines à quelques centaines de  $k\Omega$ ; MB est une pile à mercure de quelques volts destinée à fournir la tension de polarisation et le signal est une variation de tension aux bornes du bolomètre. La réponse au point de fonctionnement choisi, est calculée par :  $R = V' / 2VI$ .

Pour ces expériences de franges de Ramsey, trois bolomètres de dimensions et de caractéristiques fort différentes ont été utilisés. Tous trois ont été fournis par le professeur G. SCOLLES de l'Université de WATERLOO (CANADA).

## 4.2 RÉSULTATS PRÉLIMINAIRES AVEC DÉTECTION BOLOMÉTRIQUE

### 4.2.1 L'INTERACTION ENTRE UN FAISCEAU LASER GAUSSIEN ET UN JET MOLECULAIRE SUPERSONIQUE

Avant d'aborder les résultats expérimentaux concernant les franges de Ramsey, il est indispensable de faire un bref rappel sur l'interaction entre un faisceau laser et un jet moléculaire. Une bonne compréhension de cette interaction permet en effet de déterminer les conditions optimales pour l'observation des franges sur un jet supersonique.

La molécule utilisée pour ces expériences est  $\text{SF}_6$ , car les transitions  $P(3)$  et  $P(4)$  (J faibles) de la bande  $\nu_3$  sont accessibles à l'aide du laser guide d'ondes  $\text{CO}_2$  (ou  $\text{N}_2\text{O}$ ) stabilisé en fréquence, décrit au chapitre 2.

La figure (4.2.1) où sont présentés simultanément le spectre d'absorption linéaire sur le jet supersonique avec détection bolométrique et le spectre d'absorption saturée en cuve, illustre le fort refroidissement rotationnel du jet. Seules les trois composantes  $A_1, F_1, E$  de la raie  $P(4)$  apparaissent sur le spectre enregistré à l'aide du bolomètre. Le faisceau laser est modulé en amplitude à quelques dizaines de Hertz et le rapport signal sur bruit après détection synchrone du signal provenant du bolomètre vaut 50 à 100 pour une seconde d'intégration. La largeur de ces résonances d'absorption linéaire est de l'ordre de 300 à 500 kHz et résulte de la combinaison de l'élargissement Doppler résiduel  $k\Delta v_z$  lié à la largeur  $\Delta v_z$  de la distribution des vitesses sur l'axe Oz de propagation de la lumière et de l'élargissement  $v/w_0$  dû au temps fini de traversée du faisceau  $\frac{w_0}{v}$ .

La figure 4.2.2 présente les paramètres essentiels de la discussion qui va suivre. Une étude détaillée de l'amplitude et de la largeur des résonances d'absorption de  $\text{SF}_6$  observées sur le bolomètre, en fonction des caractéristiques géométriques du faisceau (taille et courbure des fronts d'ondes)

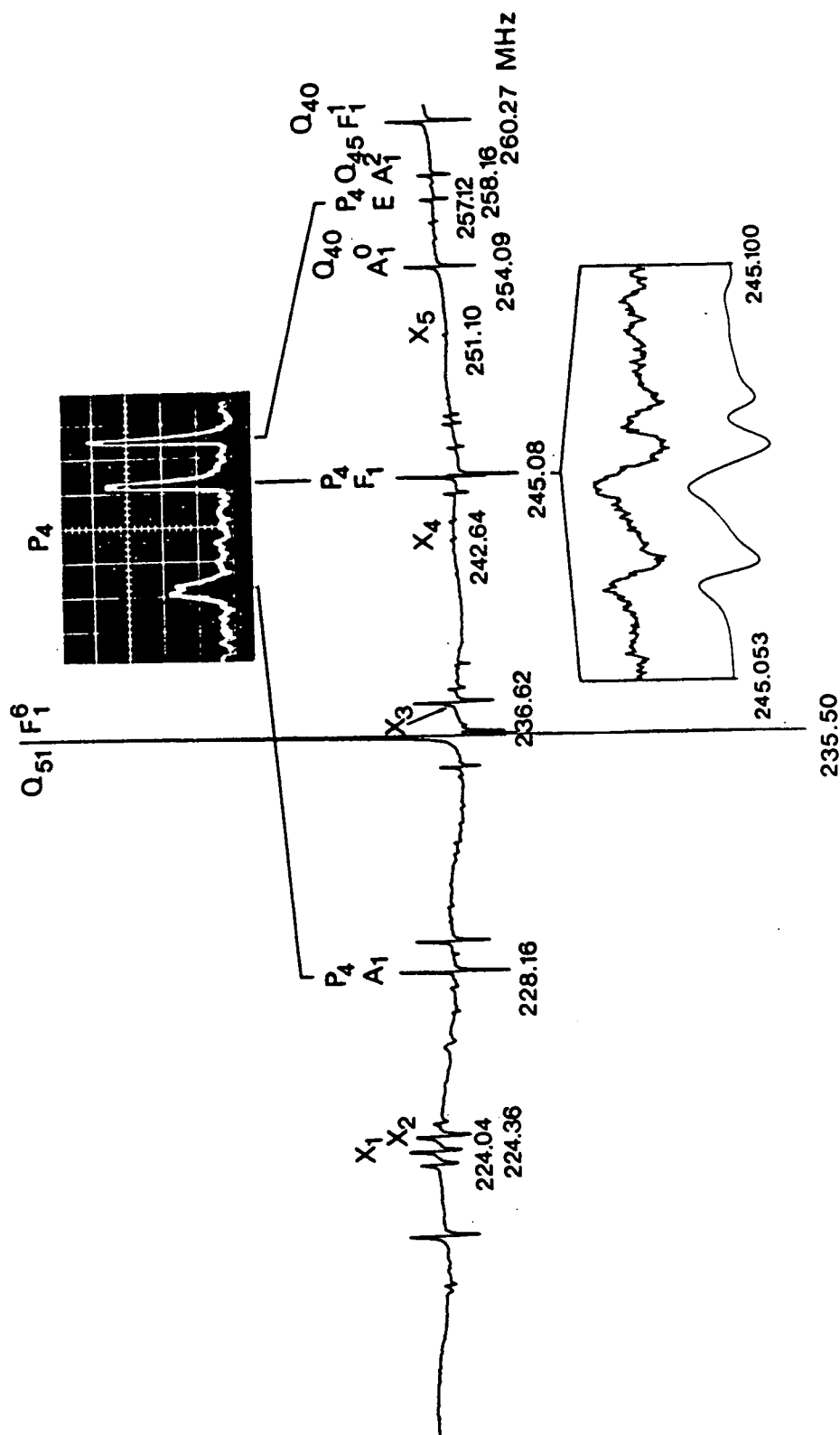


FIGURE 4.2.1

SPECTRES DE  $\text{SF}_6$  OBTENUS AVEC LA RAIE P(16) DU LASER A  $\text{CO}_2$  GUIDE D'ONDES

En haut : spectre d'absorption linéaire sur le jet supersonique avec détection bolométrique. Le laser guide d'ondes est libre, la largeur de raie est de l'ordre du MHz.

Au milieu : Spectre de saturation en cuve, à température ordinaire avec le laser libre (écarts de fréquence en MHz à partir de Q(38)E<sub>0</sub>). La largeur de raie est de l'ordre de 20 à 40 kHz.

En bas : structure hyperfine de P(4)F<sub>1</sub> (observée et calculée) avec le laser contrôlé en fréquence. La largeur de raie est d'environ 2 kHz (HWHM).

a permis de mettre en évidence un certain nombre de phénomènes transitoires cohérents intéressants [153, 26] .

Tout d'abord, le signal d'absorption, proportionnel à la population du niveau supérieur de la transition, présente un minimum très prononcé lorsque le waist du faisceau laser (que l'on fait varier avec la lentille secondaire d'un télescope) est maximum, et ceci quelle que soit l'intensité du faisceau laser incident (Fig. 4.2.3). Ce phénomène ne peut être expliqué à l'aide d'une théorie perturbative en champ faible, puisque celle-ci ne prévoit pas de minimum, mais au contraire un maximum lorsque le waist du laser est maximum [40] .

Comme il est indiqué sur la figure (4.2.2) le signal résulte de l'intégration sur  $v_z$  d'un trou de population creusé dans l'espace des vitesses, dont la largeur est déterminée par le temps de transit  $\frac{w_0}{v}$ . Cette intégrale porte sur la distribution des vitesses  $\Delta v_z$  du jet moléculaire, qui ne dépend ici, que de la largeur du bolomètre et de sa distance à l'écorceur. En champ faible, l'amplitude de ce trou de population est proportionnelle à une

efficacité d'excitation  $S = \Omega_{ba}^2 \pi \frac{w_0^2}{v^2}$  (proportionnelle au carré de l'angle de nutation effectué par le spin fictif), corrigée par  $\frac{w_0}{w}$ , qui intervient lorsque l'onde n'est pas plane au niveau du jet. Or cette efficacité d'excitation, en champ fort, tend à être remplacée par l'unité lorsque les fronts d'ondes sont sphériques (passage adiabatique rapide). Il en résulte que le signal ne dépend plus que de la fraction des molécules utilisées dans l'espace des vitesses  $v_z$ , minimales lorsque  $w_0$  est maximum et tendant vers l'unité au fur et à mesure que  $w_0$  décroît. On voit qu'une étude en champ fort et en faisceau gaussien est indispensable. Celle-ci a été effectuée à l'aide du programme SHAPE (Appendice B et [40, 29]).

Cette étude a montré qu'en présence de fronts d'ondes courbes, on obtient une inversion totale de la population des molécules du jet; c'est l'analogue du phénomène de passage adiabatique rapide en résonance magnétique [155]. En effet, la phase de l'onde vue par les molécules s'écrit :  $\varphi = -\frac{k}{2R} (v_x t)^2$  et la fréquence instantanée vaut  $\dot{\varphi} = -\frac{k}{R} v_x^2 t$  et varie donc linéairement avec  $t$ . Si le passage est assez lent, le spin fictif aura le temps de suivre le vecteur champ de façon adiabatique et il se retrouvera totalement inversé en fin de parcours [156].

Le programme SHAPE a également montré qu'il devait être possible, en

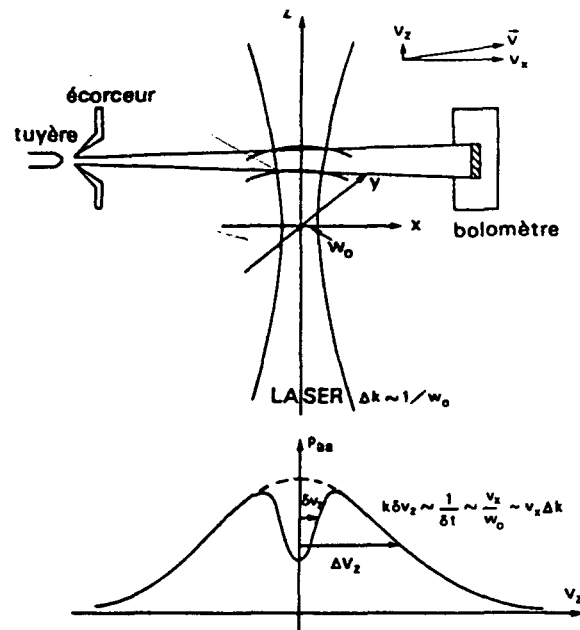


FIGURE 4.2.2 - Illustration de la géométrie et des paramètres caractérisant l'interaction entre un faisceau laser gaussien et un jet moléculaire supersonique.

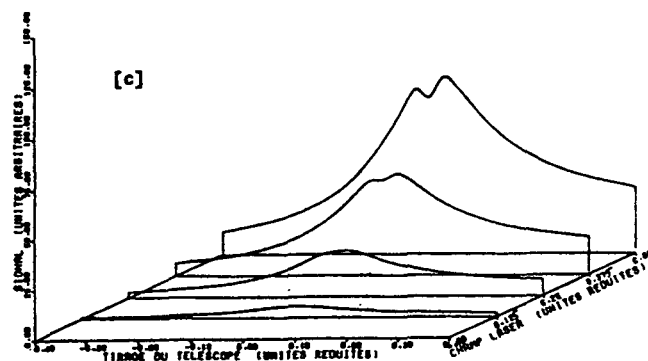
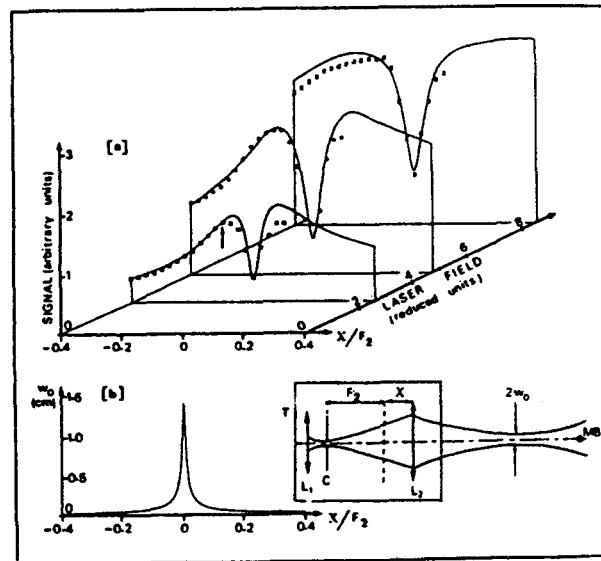


FIGURE 4.2.3 - (a) Signal fourni par le bolomètre en fonction de l'écart  $X/F_2$  à la position focale de la deuxième lentille du télescope pour des puissances laser respectivement égales à 1,8; 6 et 19,4 mW. Les lignes continues représentent les valeurs calculées par le programme SHAPE avec pour seul paramètre ajustable l'amplitude du signal pour le point indiqué par la flèche; (b) rayon  $w_0$  du faisceau laser gaussien fourni par le télescope représenté à droite et comportant deux lentilles de focales respectives  $F_1 = 10$  cm et  $F_2 = 33$  cm; (c) signal calculé par le programme SHAPE pour une puissance laser croissante à partir de conditions de champ faible.

rendant l'onde plane au niveau du jet (situation inverse de la précédente), d'observer les oscillations de Rabi entre les deux niveaux de la transition. Ces oscillations cohérentes, en fonction de l'amplitude du champ laser (proportionnelle à la racine carrée de la puissance du faisceau) ont été observées lorsque le laser est stabilisé sur la fréquence de résonance de la transition, et sont présentées sur la figure 4.2.4. Le contraste de ces oscillations diminue fortement dès que le waist  $w_0$  du faisceau laser est éloigné du jet supersonique. La valeur choisie pour  $w_0$  (6 mm) doit être la plus faible possible pour intéresser une fraction importante des vitesses  $v_z$ , mais doit également être grande devant la dimension  $y$  du jet supersonique, pour que la distribution gaussienne de l'amplitude du champ dans cette direction  $y$  (verticale) ne brouille pas les oscillations.

#### 4.2.2 DETERMINATION DES CONDITIONS OPTIMALES POUR L'OBSERVATION DES FRANGES SUR LE JET SUPERSONIQUE

Les considérations précédentes permettent de déterminer les conditions optimales pour observer des franges de Ramsey, avec détection bolométrique.

En premier lieu, il faut choisir un  $w_0$  le plus petit possible afin de bénéficier du trou le plus large possible dans la distribution des vitesses  $\Delta v_z$  déterminée par la largeur du bolomètre (1 à 2 mm suivant les expériences).

Cependant, comme l'on souhaite effectuer une impulsion  $\pi/2$  dans chaque zone de champ (et non  $\pi$  dès que les fronts d'ondes sont sphériques), il est indispensable que les fronts d'ondes des trois ou quatre zones de champ soient aussi plans que possible au niveau du jet supersonique. Ceci impose pratiquement une limite inférieure pour  $w_0$  si l'on utilise le même faisceau pour générer les différentes zones, sans recourir à l'utilisation d'une optique focalisatrice hautement sophistiquée. Enfin, si la dimension verticale ( $y$ ) du faisceau n'est pas grande devant la taille verticale du jet, il y aura une diminution du contraste des franges car l'impulsion  $\pi/2$  ne sera pas obtenue pour la même valeur de la puissance du laser pour toutes les molécules du jet.

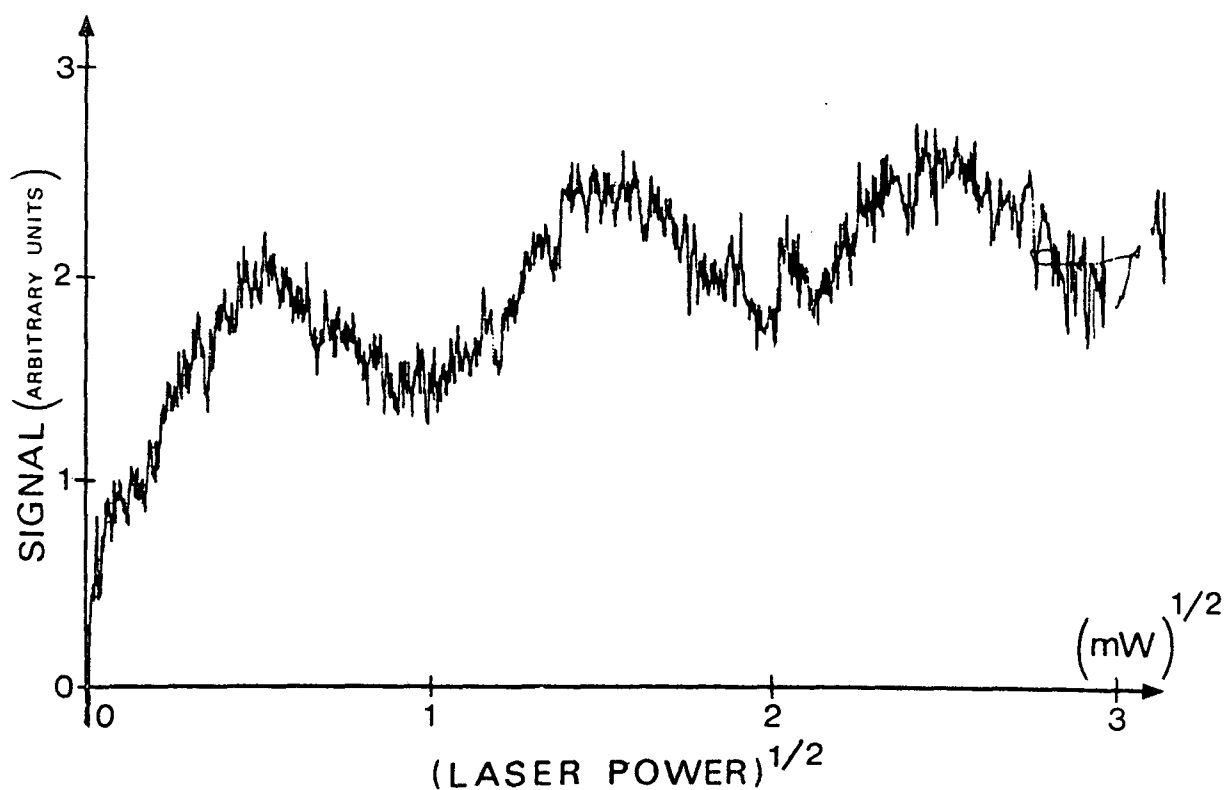


FIGURE 4.2.4

Signal fourni par le bolomètre en fonction du champ laser. (On a porté en abscisse la racine carrée de la puissance totale du faisceau laser). La fréquence du laser est asservie à celle du centre de la transition  $P(4)F_1$  de  $SF_6$ . L'amortissement des oscillations de Rabi est faible malgré la dégénérescence et la structure de la transition car les moments de transition correspondants sont très voisins. Voir tableau 3.4 p. 199.

### 4.3 LES FRANGES DE RAMSEY AVEC DÉTECTION BOLOMÉTRIQUE :

#### 4.3.1 COMPARAISON ENTRE LES GEOMETRIES D'INTERACTION A TROIS ONDES STATIONNAIRES ET A QUATRE ONDES PROGRESSIVES

Dans une première série d'expériences (à résolution moyenne  $\sim 100$  kHz) nous souhaitons comparer les géométries d'interaction à trois ondes stationnaires et à quatre ondes progressives puisqu'aucune des expériences antérieures [19-24] n'utilisait le système des quatre ondes progressives.

Pour générer une triple onde stationnaire, un faisceau gaussien unique de rayon  $w_0 = 6$  mm, éclairait un ensemble de trois fentes équidistantes de largeur 1 mm. (Fig. 4.3.1). Un coin de cube, creux, doré, situé de l'autre côté du jet moléculaire, centré sur la fente du milieu, rétro-réfléchit la lumière de façon à engendrer trois ondes stationnaires parallèles. Le waist du faisceau gaussien avait été soigneusement placé sur le jet supersonique avant la mise en place des fentes, en optimisant le contraste des oscillations de Rabi décrites au paragraphe précédent. Les trois ondes incidentes provenant du même faisceau ont la même phase :  $\varphi_1^+ = \varphi_2^+ = \varphi_3^+$ .

De la qualité interférométrique du coin de cube et de l'égalité rigoureuse des trajets optiques  $L$  des faisceaux réfléchis par le coin de cube, on déduit :

$$\varphi_3^- = \varphi_1^+ + kL$$

$$\varphi_2^- = \varphi_2^+ + kL$$

$$\varphi_1^- = \varphi_3^+ + kL$$

Il en résulte que la condition de phase  $\varphi_1^+ - \varphi_2^+ + \varphi_2^- - \varphi_3^- = 0$  pour l'observation des franges est automatiquement satisfaite, quel que soit l'angle d'incidence du faisceau laser, à mieux que  $\sim \lambda/20$  à  $10 \mu\text{m}$ .

Dans une seconde géométrie (Fig. 4.3.1) seules deux des trois fentes sont éclairées et les deux ondes transmises sont réfléchies par le coin de cube, avec un décalage spatial, de façon à obtenir quatre ondes progressives. Il est immédiat de vérifier que la condition de phase (1.26) est également satisfaite.



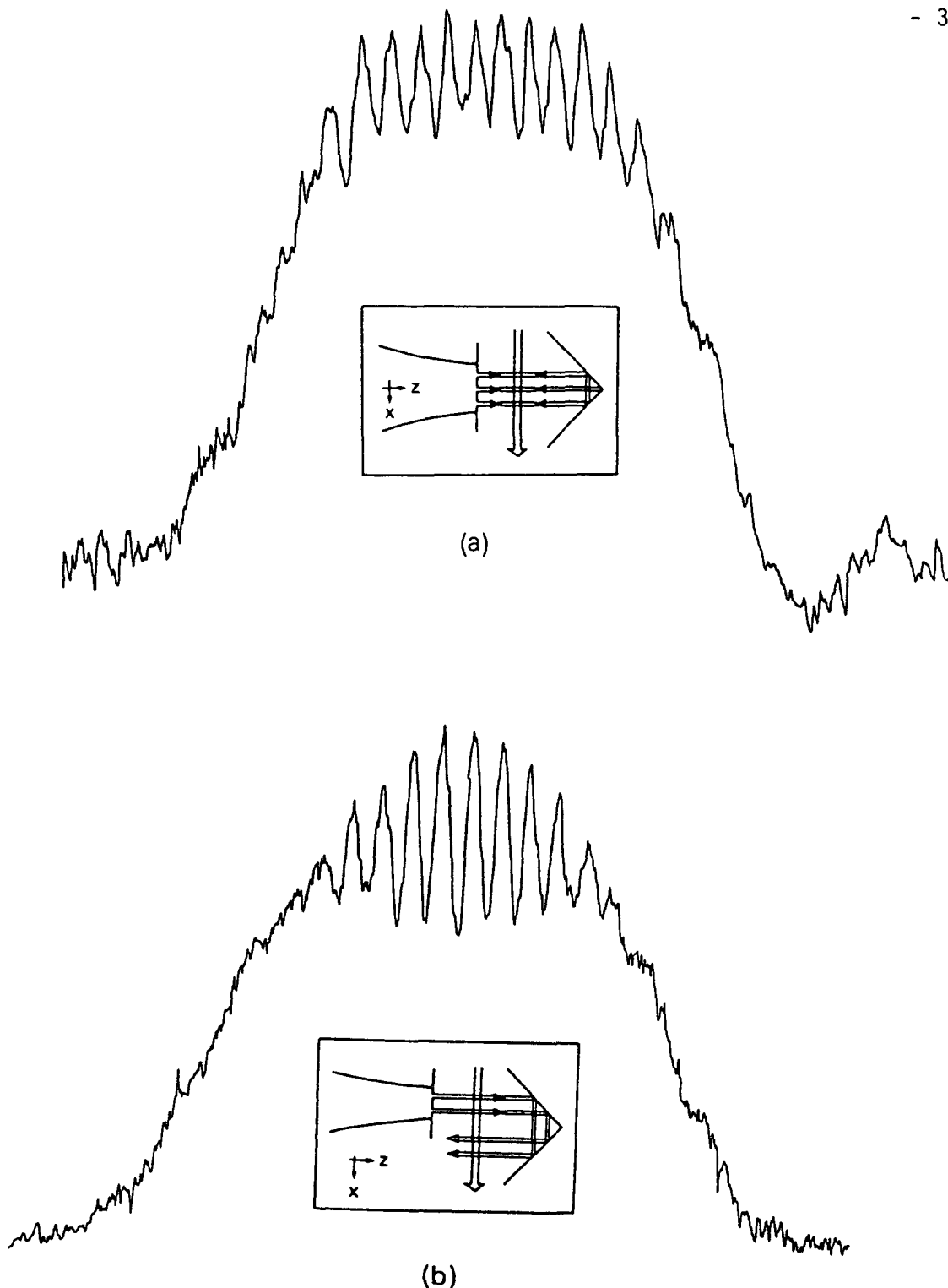


FIGURE 4.3.1

- (a) Franges de Ramsey obtenues pour la raie  $P(4)F_1$  de  $SF_6$  à l'aide d'une triple onde stationnaire. (La géométrie d'interaction est illustrée par l'encart; distance entre zones : 5 mm). L'échelle horizontale est linéaire en fréquence et la période des franges est de 94 kHz. La puissance du laser a été ajustée de façon à optimiser le contraste des franges. Le faisceau laser était modulé en amplitude à la fréquence de 30 Hz. Le signal bolométrique après détection synchrone à 30 Hz a été enregistré en un seul balayage de durée une minute avec une constante de temps de 0,1 s.
- (b) Mêmes conditions que (a), mais avec une géométrie d'interaction comportant quatre ondes progressives.

Après la traversée des trois ou quatre zones d'illumination, les molécules du jet viennent frapper le bolomètre semi-conducteur de dimensions (1 mm x 5 mm) et situé à 48 cm de l'écorceur. Ses caractéristiques électriques révèlent une sensibilité à 4,2 K de  $4 \times 10^4$  V/W et une PEB théorique de  $8 \times 10^{-13}$  W/ $\sqrt{\text{Hz}}$ , pour un courant de polarisation de 5  $\mu\text{A}$  et une fréquence de modulation comprise entre 60 et 90 Hz.

La figure 4.3.1 présente les franges obtenues pour les deux géométries d'interaction, dans le cas de la raie  $P(4)F_1$  de  $\text{SF}_6$ . L'intensité du faisceau laser dans les deux expériences a été ajustée de façon à optimiser le contraste des franges. Le contraste en ondes progressives apparaît alors clairement deux ou trois fois meilleur que le contraste en ondes stationnaires, ce qui est justement prédit par la théorie développée au Chapitre 1\*. En réalité, ces expériences ont quelque peu précédé les résultats de la théorie en ondes planes, et le contraste  $C$  des franges nous a surpris ( $C$  = taille des franges/hauteur maximale du signal = 40% en ondes progressives). En effet, les expériences antérieures sur le néon et le calcium [19-24] n'avaient obtenu qu'un contraste inférieur à 4%.

Il apparaît clairement sur ces spectres que l'élargissement par temps de transit (l'enveloppe des franges de Ramsey) et la largeur provenant de la distribution des vitesses  $\Delta v_z$ , sont bien adaptées. En effet, la largeur due au transit dans chacune des zones est de l'ordre de  $\frac{1}{2} \frac{v_x}{a}$  soit environ 500 kHz avec des fentes de largeur  $a = 1$  mm. Si  $d$  est la largeur du bolomètre (1mm) et  $L$  la distance entre l'écorceur et le bolomètre, la largeur  $2\Delta v_z/\lambda$  provenant de la distribution des vitesses  $v_z$  s'écrit, dans l'hypothèse du point source :  $2\Delta v_z/\lambda \approx \frac{d}{L} \frac{v_x}{\lambda} = 200$  kHz, et est bien comparable à l'élargissement par temps de vol.

En fait, cette hypothèse du point de source localisé au voisinage de l'écorceur, s'est avérée assez grossière, car l'écorceur (qui présente un diamètre d'environ 1/2 millimètre) est le siège de phénomènes complexes. En pratique, il faut quasiment doubler la valeur précédente.

A partir de la période  $\frac{1}{T}$  des franges (94 kHz) et de la formule simplifiée,  $\frac{1}{T} = \frac{v_x}{2D}$  où  $D$  est la distance entre zones (5 mm), on déduit la vitesse d'ensemble du jet supersonique  $v_x = 940$  m/s, en bon accord avec les mesures effectuées par temps de vol dans des conditions similaires [152]. Enfin, le fait que de nombreuses franges latérales soient visibles,

---

\* Une conclusion similaire a été atteinte au P.T.B. (BRAUNSCHWEIG) à l'issue d'expériences sur le calcium à 6573 Å, menées parallèlement aux nôtres et stimulées par notre travail théorique [63].

confirme la bonne monochromaticité des vitesses longitudinales des molécules du jet.

En effet, les minimums successifs du spectre de la figure 4.3.1, sont situés à  $v_0 \pm \frac{n}{T}$ ,  $n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$  où  $\frac{1}{T}$  est proportionnel à  $v_x$ .

Il est alors clair qu'une distribution des vitesses longitudinales  $v_x$  va déphaser les franges latérales associées à chaque classe de vitesse  $v_x$ , d'autant plus que  $n$  est grand.

#### 4.3.2 DISCUSSION : COMPARAISON AVEC LA THEORIE EN ONDES PLANES

La théorie en ondes planes avec quatre ondes progressives, développée au Chapitre 1 permet une confrontation quantitative avec les résultats expérimentaux précédents. Les courbes théoriques (b) et (c) de la figure 4.3.2 proviennent des formules (1.24) et (1.25) du Chapitre 1, où l'intégration sur  $v_z$  (Oz est l'axe de propagation des faisceaux lumineux) a été effectuée numériquement. La distribution des vitesses  $v_z$  (déterminée par la géométrie de l'expérience) a été supposée rectangulaire. (Le choix d'une gaussienne de même largeur à  $1/e^2$  ne modifie pas sensiblement l'allure des courbes (b), (c) ou (d)). On a pris quatre crêneaux de même taille  $\tau$  (Fig. 1.3.6), et de mêmes pulsations de Rabi  $\Omega = \Omega_i$  ( $i = 1, \dots, 4$ ). La relaxation a été négligée ( $\gamma_a = \gamma_b = 0$ ). La largeur totale du signal est une combinaison de l'élargissement par temps de transit dans chaque zone et de l'élargissement Doppler dû à la distribution des vitesses  $v_z$  des molécules détectées par le bolomètre. Les deux paramètres correspondants ( $\tau$  et  $\Delta v_z$ ) ne sont pas parfaitement définis dans cette expérience à cause de la diffraction par les fentes et à cause du manque de connaissance précise de la distribution des vitesses du jet supersonique.  $\tau$  et  $\Delta v_z$  sont clairement couplés dans notre "fit". Ayant fait varier simultanément ces deux paramètres, le meilleur accord avec l'expérience a été obtenu pour une largeur  $2\Delta v_z/\lambda$  de l'ordre de 400 kHz et un temps  $\tau$  égal à 4/5 de la valeur déduite de la largeur des fentes. Enfin, la pulsation de Rabi  $\Omega$  commune aux quatre champs a été déterminée de façon à reproduire le contraste expérimental des franges (40 %): pour la figure 4.3.2 (b),  $2\Omega_{ba}\tau = 0,988$ .

Ce contraste expérimental pour les franges, à l'optimum de champ, n'atteint pas la valeur théorique ( $\approx 2/3$ ), qui est obtenue pour  $2\Omega_{ba}\tau = 1,8$ .

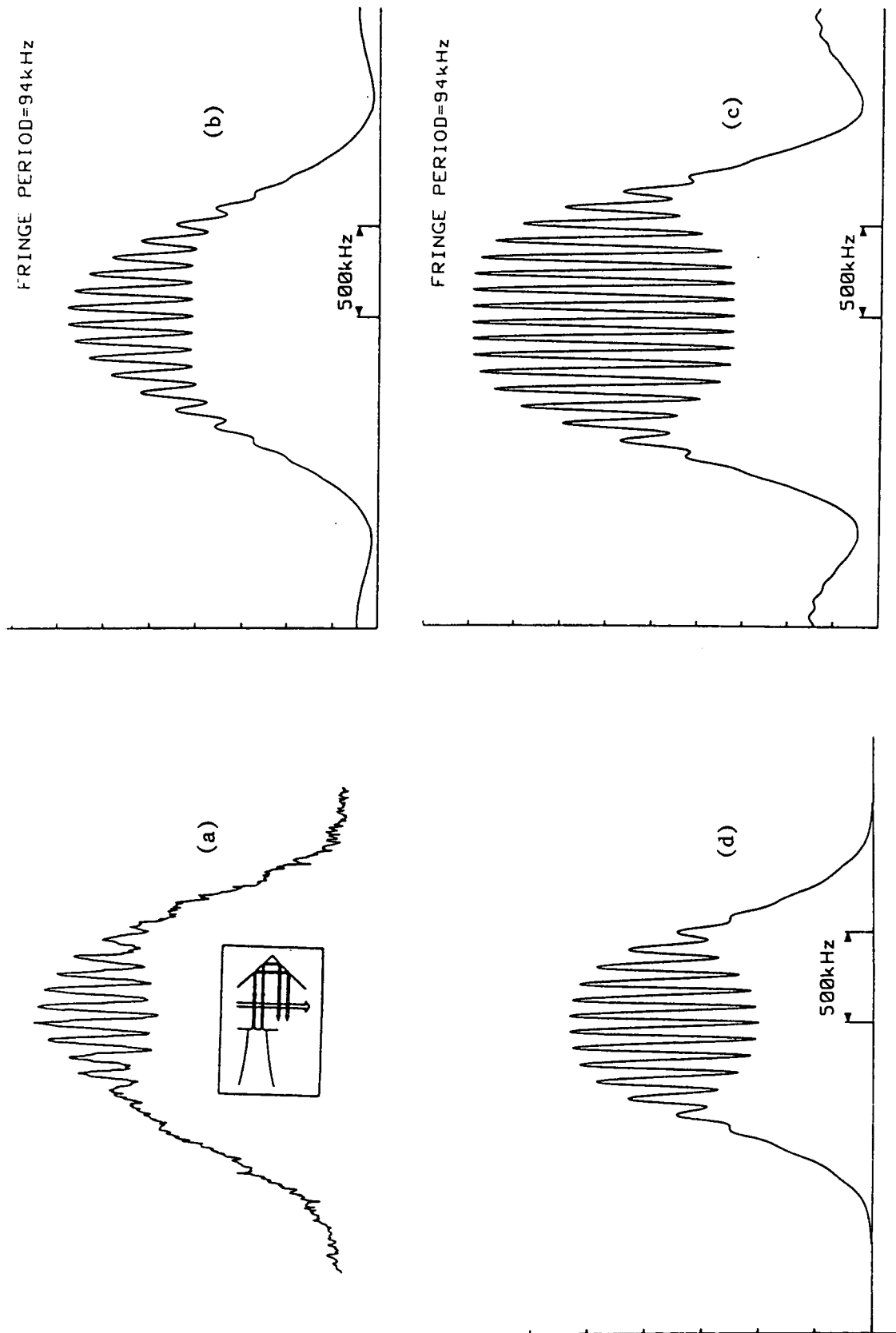


FIGURE 4.3.2 : COMPARAISON EXPERIENCE-THEORIE

- (a) Franges de Ramsey obtenues avec quatre ondes progressives et détection bolométrique. Période des franges : 94 kHz. Raie  $P(4)F_1$  de  $SF_6$ .
- (b) et (c) Spectres théoriques calculés à l'aide des formules (24) et (25) du Chapitre I, sans relaxation ni effet de recul, avec  $T/\tau = 5,25$  et  $\Omega_1\tau = 0,988$  pour (b) et  $\Omega_1\tau = 1,8$  pour (c) (contraste optimum). Les quatre ondes progressives ont un profil rectangulaire de durée  $\tau$ .  $T$  est le temps qui sépare deux ondes progressives de même sens.
- (d) Spectre calculé numériquement (programme SHAPE) pour quatre ondes progressives de profil gaussien, séparées de 5 mm et de rayon  $w_0 = 0,5$  mm, à l'optimum d'intensité.

La figure correspondante est la figure 4.3.2 (c). Cette valeur 1,8 est légèrement supérieure à  $\pi/2$ , à cause de la dépendance en  $v_z$  de  $|\Omega|$ , par l'intermédiaire de  $\Omega_3$  dans les formules (1.24) et (1.25) du Chapitre 1.

Un certain nombre de raisons pratiques expliquent pourquoi le contraste expérimental n'atteint pas  $2/3$  :

- Tout d'abord, la distribution des moments de transition, discutée en détail au Chapitre 3 ; (distribution des coefficients Clebsch-Gordan pour chaque transition entre sous-niveaux magnétiques). L'impulsion  $\pi/2$  optimale étant en  $v^2/\mu^2$  ne sera pas simultanément optimale pour toutes les transitions Zeeman. Cependant, cet effet est relativement faible pour  $P(4)$  (voir paragraphe 3.3.2 et en particulier le tableau 3.4 p. 199).

- De même, la distribution gaussienne de l'amplitude du champ laser dans la direction verticale ( $y$ ) n'est pas totalement plate puisque l'on a choisi  $w_0 = 6$  mm et que la hauteur du bolomètre est de 5 mm. La pulsation de Rabi  $\Omega$  varie entre  $0,84 \Omega_{\max}$  (pour  $y = 2,5$  mm) et  $\Omega_{\max}$  ( $y = 0$ ).

- La transition  $P(4)F_1$  présente une structure hyperfine qui s'étend sur une vingtaine de kHz qui est à comparer à la largeur des franges (50 kHz).

- Les fentes provoquent de la diffraction et par conséquent altèrent les fronts d'ondes. La condition de phase n'est alors qu'imparfaitement satisfaite et nous avons vu que la sphéricité des fronts d'ondes avait tendance à inverser le milieu (impulsion  $\pi$  au lieu de  $\pi/2$ ). Un calcul de diffraction a d'autre part montré que l'amplitude du champ s'éloignait notablement, après propagation derrière les fentes, du créneau parfait. La remontée du signal sur les ailes du spectre théorique ( $\omega - \omega_0$  grand) (la transformée de Fourier du créneau est en  $\frac{\sin x}{x}$ ), n'est d'ailleurs pas observée expérimentalement.

- Enfin, la distribution des modules des vitesses  $v_x$ , bien qu'étroite (13%), n'a pas été effectuée, ici, par souci de simplicité; elle affecte légèrement la condition  $\Omega\tau \sim \pi/2$  et réduira plus rapidement le contraste des franges latérales, comme cela a déjà été mentionné.

#### 4.3.3 COMPARAISON AVEC LA THEORIE EN FAISCEAUX GAUSSIENS

La figure 4.3.2 (d) présente le système de franges obtenu à l'aide du programme SHAPE ([ 40,29] et Appendice B), à l'optimum de champ. C'est une résolution numérique "exacte" de l'interaction entre les quatre faisceaux de profil gaussien, séparés dans l'espace, et le jet moléculaire. Nous avons supposé que les fronts d'ondes étaient plans dans les quatre zones d'interaction (Waist sur le jet supersonique).

Pour simplifier, on a pris les quatre ondes progressives de même rayon  $w_0 = 0,5$  mm séparées par 5 mm, et une répartition gaussienne des vitesses  $v_z$  conduisant à une largeur Doppler d'environ 400 kHz.

Le contraste des franges à l'optimum de champ ( $2\Omega_{ba} \times \frac{w_0}{v_z} = 1$ ), a la même valeur qu'en ondes planes ( $\sim 2/3$ ). Comme en ondes planes, cet optimum est légèrement supérieur à la valeur théorique (pour  $v_z = 0$ )  $\frac{\sqrt{\pi}}{2} = 0,89$ , à cause de la distribution des vitesses  $v_z$ .

L'allure générale du signal est plus proche de la courbe expérimentale; en particulier, la remontée sur les ailes du spectre en ondes planes disparaît en faisceaux gaussiens. De même, l'égalesation de la taille des franges au voisinage de la résonance ( $\omega = \omega_0$ ) est moins marqué, à l'optimum de champ, en faisceaux gaussiens et n'apparaît qu'au-delà de l'impulsion  $\pi/2$ : Figure B.2 (b) de l'Appendice B.

#### Remarque.

La comparaison des signaux expérimentaux et théoriques avec la géométrie comportant la triple onde stationnaire pourrait s'effectuer de la même façon. Il suffit d'intégrer sur les vitesses  $v_z$  l'expression (1.62) du Chapitre 1. Cependant, l'approximation qui sous-tend cette théorie ( $\omega$  de l'ordre de  $\omega_0$  dans les régions où le champ laser n'est pas nul), n'autorise pas une comparaison quantitative sur l'ensemble du profil. Seule, aurait un sens, l'allure au voisinage de la frange centrale.

#### 4.3.4 CALCUL DE L'ORDRE DE GRANDEUR DU SIGNAL SUR LE BOLOMETRE.

##### DISCUSSION

La puissance absorbée par les molécules du jet supersonique peut se calculer très simplement par [43] :

$$P_b = n_{4F_1} \cdot \Phi \cdot \delta\Omega \cdot h\nu \frac{\delta v_z}{\Delta v_z} \quad (4.3)$$

où :

- $P$  est la puissance absorbée (en W) par le jet supersonique;
- $n_{4F_1}$  est la fraction des molécules du jet dans le niveau de départ de la transition ( $v = 0$ ,  $J = 4$ , représentation irréductible  $F_1$ );
- $\Phi$  est le flux total de molécules par unité d'angle solide, de l'ordre de  $10^{18}$  molécules par stéradian et par seconde;
- $\delta\Omega$  est l'angle solide sous lequel est vu le bolomètre, dans l'hypothèse de l'écorceur point source;
- $h\nu$  est l'énergie échangée par molécule avec le champ laser à l'optimum d'intensité (impulsion  $\pi$  pour l'absorption linéaire);
- $\frac{\delta v_z}{\Delta v_z}$  est la fraction des molécules dans l'espace des  $v_z$  qui contribuent au signal d'absorption. Elle est proportionnelle au rapport entre l'élargissement par temps de transit fini et la largeur de la distribution des vitesses des molécules détectées ( $\Delta v_z$ ).

Dans les premières expériences (franges de Ramsey à basse résolution), l'élargissement par temps de transit fini était du même ordre de grandeur que la distribution des vitesses des molécules détectées, de sorte que  $\frac{\delta v_z}{\Delta v_z}$  valait sensiblement 1. (Dans les expériences à haute résolution qui suivent, la figure 4.4.8 indique clairement que ce rapport est de l'ordre de 1/4).

La formule (4.3) permet également de calculer le signal de franges de Ramsey, puisqu'à l'optimum de champ, il est de l'ordre de 2/3 du signal linéaire.

Avec :

$$n_{4F_1} = 0,01$$

$$\Phi = 10^{18} \text{ molécules/stéradian-seconde}$$

$$\delta\Omega = \frac{4 \times 1 \times 5}{4 (0,5)^2} \times 10^{-6} = 2 \times 10^{-5} \text{ stéradian}$$

$$h\nu = 1,88 \times 10^{-20} \text{ J} \quad \text{et}$$

$$\frac{\delta v_z}{\Delta v_z} = 1$$

nous trouvons que la puissance absorbée est de l'ordre de  $3,6 \times 10^{-9} \text{ W}$ . Il est à noter que l'utilisation d'une modulation d'amplitude du faisceau

laser pour effectuer une détection synchrone divise cette valeur par 2. On s'attend donc à un signal de l'ordre de 2 nanoWatt. Cette valeur théorique peut être comparée à la valeur expérimentale, déduite de la sensibilité théorique du bolomètre et du gain de la chaîne de détection (amplificateur de gain 1000 et détection synchrone). Pour le spectre de la figure 4.3.1 (b), nous trouvons une puissance de l'ordre de  $0,5 \times 10^{-9}$  Watt qui est en bon accord avec la valeur théorique si l'on se souvient que la sensibilité du bolomètre n'est déterminée qu'électriquement, c'est-à-dire en l'absence de jet. Il est alors raisonnable de supposer que la conversion d'énergie au niveau du bolomètre (siège de phénomènes complexes, car il est très froid) se fait avec une efficacité notablement plus faible que 1.

De fait, au cours de différents enregistrements effectués la même journée, nous avons observé des variations considérables de la détectivité et de la puissance de bruit du bolomètre. Ceci fut attribué à la formation d'agrégats solides sur la surface du bolomètre refroidi. Ces agrégats disparaissaient momentanément lorsque le bolomètre était volontairement réchauffé électriquement. Il est alors clair que ces agrégats vont altérer la conversion d'énergie au niveau du bolomètre, augmenter sa capacité calorifique et produire un bruit supplémentaire à cause de leur instabilité mécanique.

Dans les conditions les plus favorables (Fig. 4.3.1), le rapport signal sur bruit, de l'ordre de 100 à 150 dans une bande passante de 1 Hz est quatre à six fois plus faible que la valeur déduite de la puissance équivalente de bruit théorique. (Mesurée électriquement :  $8 \times 10^{-13}$  W/ $\sqrt{\text{Hz}}$ ).

Ainsi, le calcul d'ordre de grandeur qui précède et les résultats expérimentaux fournissent un signal d'absorption linéaire dans la gamme des  $10^{-9}$  Watt.

Or, nous avons montré au Chapitre 3, qu'il était possible, dans la grande cuve d'absorption, de détecter des raies de saturation correspondant à une puissance absorbée sur le faisceau laser de l'ordre de  $10^{-12}$  Watt.

La détectivité ultime obtenue en absorption, avec les détecteurs HgCdTe, et la difficulté d'obtenir des résultats reproductibles à la limite de la détectivité des bolomètres dont nous disposions, nous ont incités à tenter une détection optique directe de l'absorption du jet, sur le faisceau laser lui-même. Ainsi que nous allons le voir un peu plus loin, le rapport signal sur bruit obtenu s'est avéré excellent et notablement supérieur au rapport signal sur bruit de la détection bolométrique.



#### 4.4 LES FRANGES DE RAMSEY À HAUTE RÉOLUTION [27,28,38]

Dans une deuxième étape, il fallait montrer que la technique des franges de Ramsey permettait l'obtention d'une très haute résolution, c'est-à-dire dans la zone du kHz. Sur les spectres qui viennent d'être présentés, la largeur des franges, de l'ordre de 50 kHz, est en effet bien loin des possibilités offertes par le spectromètre décrit au Chapitre 2, utilisant des lasers stabilisés en fréquence au niveau de la dizaine de Hertz. A l'aide du montage optique présenté sur la figure 4.4.1, nous avons pu porter la distance entre les zones d'interaction à 4,5 cm. Ce montage optique est directement inspiré des techniques que nous avons développées pour tenter d'observer des franges de Ramsey dans la grande cuve d'absorption. Les quatre ondes progressives sont générées à partir du même faisceau gaussien, qui est rétro-réfléchi successivement par deux coins de cube creux se faisant face. Ces deux coins de cube, de haute qualité optique ( $\lambda/4$  dans le visible), d'ouvertures respectives, 120 mm et 80 mm, ont les dimensions les plus élevées possibles, qui soient compatibles avec le volume intérieur de la chambre de mesure du jet supersonique (Fig. 4.1.1). Cette fois, nous avons les relations de phase suivantes :

$$\Phi_4^- = \Phi_1^+ + kL \quad \text{et} \quad \Phi_3^- = \Phi_2^+ + kL$$

D'où  $\Phi_1^+ - \Phi_2^+ = \Phi_4^- - \Phi_3^-$ . Ainsi la condition de phase nécessaire pour l'obtention et le non-déplacement des franges de Ramsey en ondes progressives est à nouveau satisfaite à une fraction de frange près ( $\lambda/20$ ) dans l'infrarouge.

Le jet supersonique, défini par la ligne écorceur-centre du bolomètre, et la direction horizontale perpendiculaire au jet définissent un plan P dans lequel doivent se trouver les quatre faisceaux lasers 1, 2, 3, 4. Si le faisceau incident (1) est situé dans le plan de symétrie (sensiblement horizontal) du coin de cube CC1, le faisceau réfléchi (4) sera également dans ce plan. Par un premier réglage de hauteur, le plan de symétrie du coin de cube CC2 sera superposé au plan de symétrie du coin de cube CC1. Puis la plate-forme supportant les deux coins de cube sera translatée en bloc de façon à superposer le plan de symétrie des coins de cube et le plan horizontal contenant le jet supersonique. Deux diaphragmes placés sur le trajet(1)

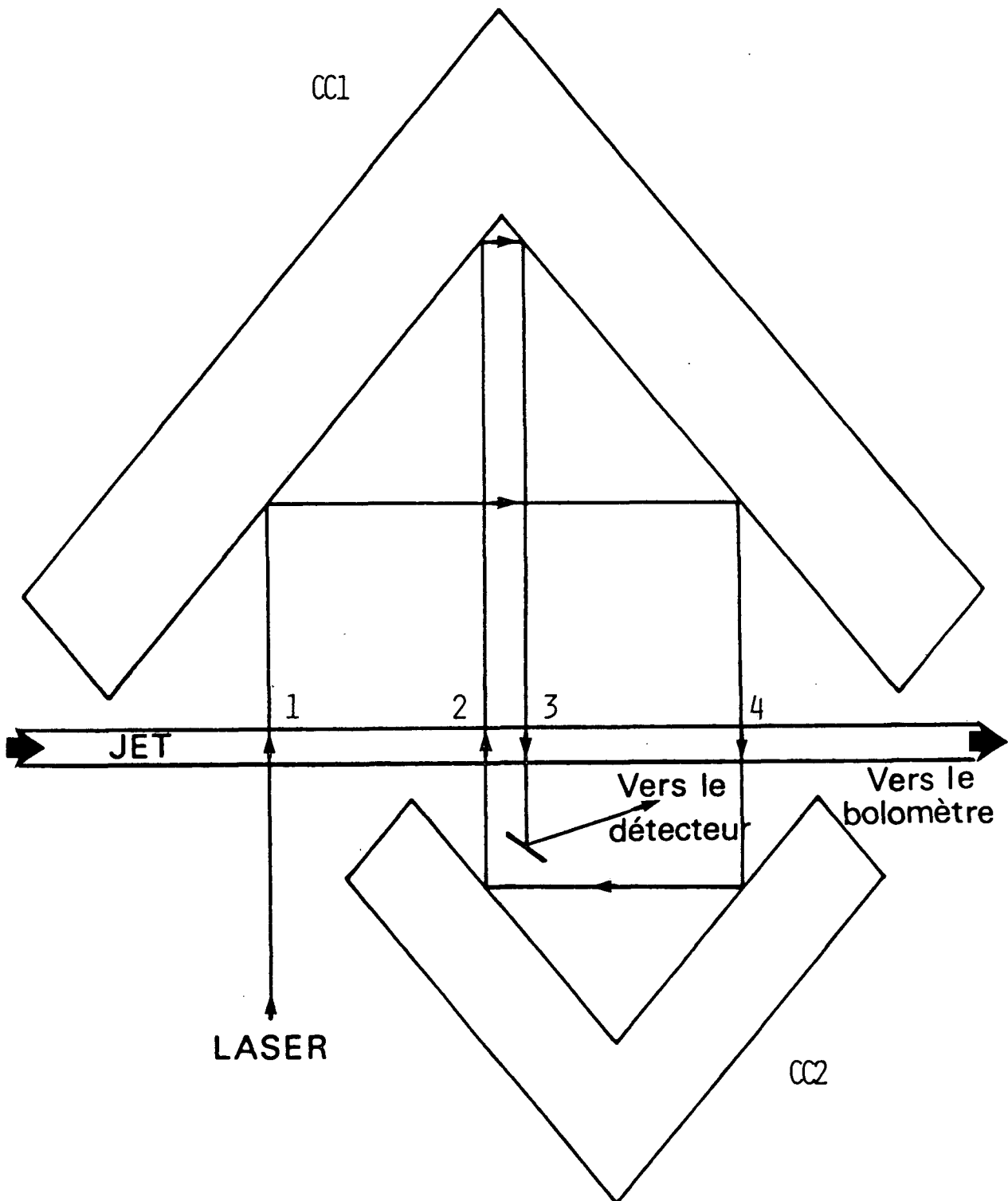


FIGURE 4.4.1

Système optique de deux rétroreflecteurs creux permettant d'obtenir deux couples d'ondes gaussiennes progressives. Les deux trièdres utilisés ont une ouverture utile de 8 et 14 cm respectivement, permettant un écartement de 4,5 cm entre ondes progressives de même sens.

définiront alors la position du faisceau laser incident (faisceau (1)). Ces réglages ont été effectués à l'aide d'un laser He-Ne, dans le rouge.

La longueur  $d$  du trajet optique sur laquelle les fronts d'ondes doivent être aussi plans que possible, est de l'ordre de 40 cm. ( $d$  est la distance entre la zone d'interaction (1) et la zone d'interaction (3) de sortie du faisceau laser). Cette distance  $d$  doit être très petite devant le paramètre confocal  $b$  du faisceau infrarouge de rayon  $w_0$  .. ( $b = kw_0^2$ ). En effet, dès que l'on s'éloigne du waist d'une distance  $\frac{b}{2}$ , la courbure du front d'onde du faisceau gaussien vaut  $b$ .

C'est pourquoi nous avons choisi un faisceau infrarouge, convenablement filtré spatialement, de rayon  $w_0 = 2,3$  mm. et dont le paramètre confocal  $b$  vaut sensiblement 3 mètres. Par des mesures de la taille du faisceau à diverses distances, nous avons pu placer le waist ("col") du faisceau gaussien approximativement au milieu des quatre zones d'interaction ( $d/2$ ). Ainsi, à 1,5 mètre de distance du waist, la courbure des fronts d'ondes est maximale et s'élève à 3 mètres soit  $\lambda/6$  pour notre faisceau de rayon  $w_0 = 2,3$  mm.

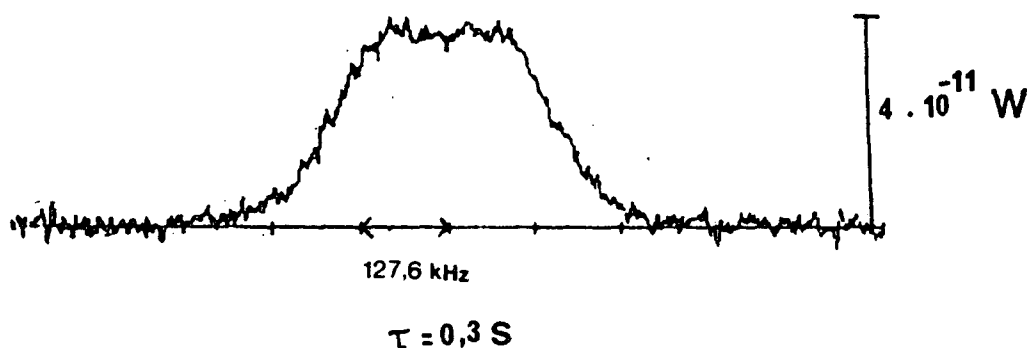
Si le waist est effectivement situé à  $d/2$ , alors les positions extrêmes (zones (1) et (3)) ne sont qu'à  $\pm b/15$  de sorte que la courbure associée est beaucoup plus faible que  $\lambda/6$ .

Pour ne détecter sur le signal du bolomètre que la contribution induite par le faisceau laser, celui-ci est modulé en amplitude à une fréquence  $\nu$  de quelques dizaines de Hz et une détection synchrone à  $\nu$  fournit les signaux présentés au paragraphe suivant.

#### 4.4.1 LES FRANGES A HAUTE RESOLUTION AVEC DETECTION BOLOMETRIQUE

La soudure de l'un des fils d'or supportant le bolomètre utilisé dans les expériences précédentes ayant cédé, et après quelques essais infructueux de micro-soudure au laboratoire, il nous a fallu utiliser un bolomètre de dimensions malheureusement beaucoup plus faibles (hauteur : 1 mm, largeur : 1,5 mm). Cette hauteur de 1 mm réduit d'un facteur sensiblement 5, le nombre de molécules détectées. Par contre, à la température de 1,7 K obtenue en pompant sur l'hélium liquide du cryostat, ce bolomètre présente une sensibilité tout à fait remarquable (150.000 V/W) et une puissance équivalente de bruit théorique de l'ordre de  $2 \times 10^{-13} \text{ W}/\sqrt{\text{Hz}}$ .

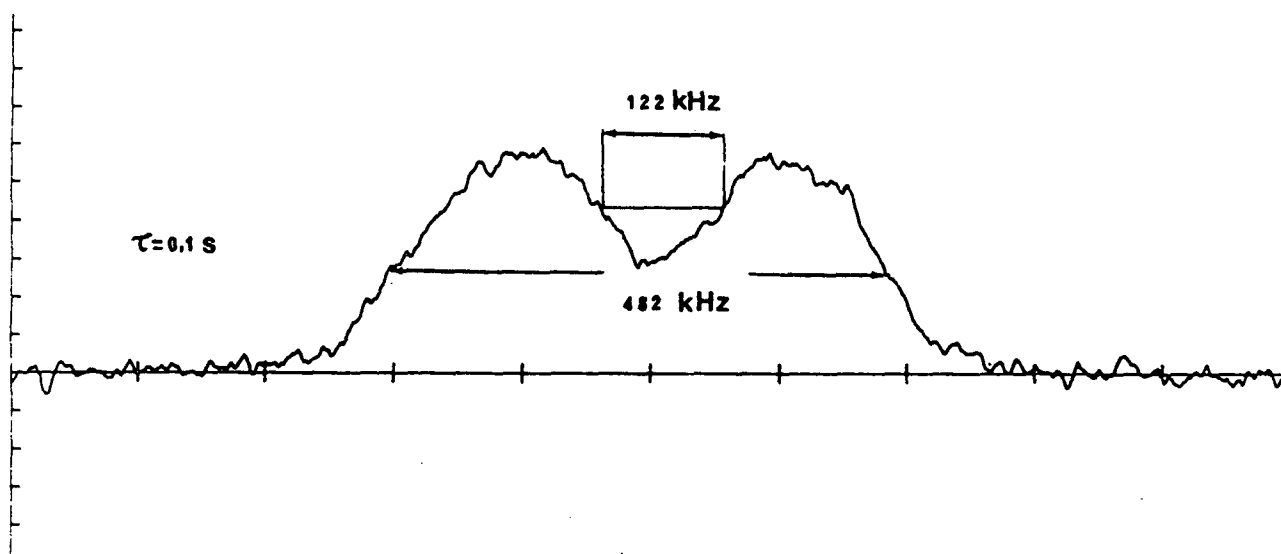
FR.INIT=210874.18 kHz FR.FIN=212150.30 kHz  
MOYENNE APRES 1 BALAYAGE DE DUREE 127 SEC



FREQ.--->  
BALAYAGE SUR 1276.12 kHz  
NOM: SF6 P4 A1

FIGURE 4.4.2 - Signal bolométrique avec le montage de la figure 4.4.1 utilisant quatre ondes progressives, pour la raie  $P(4)A_1$  de  $SF_6$ , en champ laser faible. (Un balayage de durée 127 secondes avec une constante de temps de 0,3 seconde). La largeur à mi-hauteur du signal d'absorption est de l'ordre de 350 kHz. La détectivité du bolomètre employé est d'environ  $8 \times 10^{-13} \text{ W}/\sqrt{\text{Hz}}$ .

FR.INIT=210881.73 kHz FR.FIN=212149.59 kHz  
MOYENNE APRES 5 BALAYAGES DE DUREE 33 SEC



FREQ.--->  
BALAYAGE SUR 1267.86 kHz  
NOM: SF6 P4 A1

FIGURE 4.4.3 - Signal bolométrique pour la raie  $P(4)A_1$  de  $SF_6$  avec le montage de la figure 4.4.1 utilisant quatre ondes progressives, en champ laser fort. (Au voisinage d'une impulsion  $\pi/2$ ). Le trou de saturation est principalement élargi par le temps de vol des molécules à travers les faisceaux de rayon  $w_0 = 2,3 \text{ mm}$ , et légèrement par saturation.

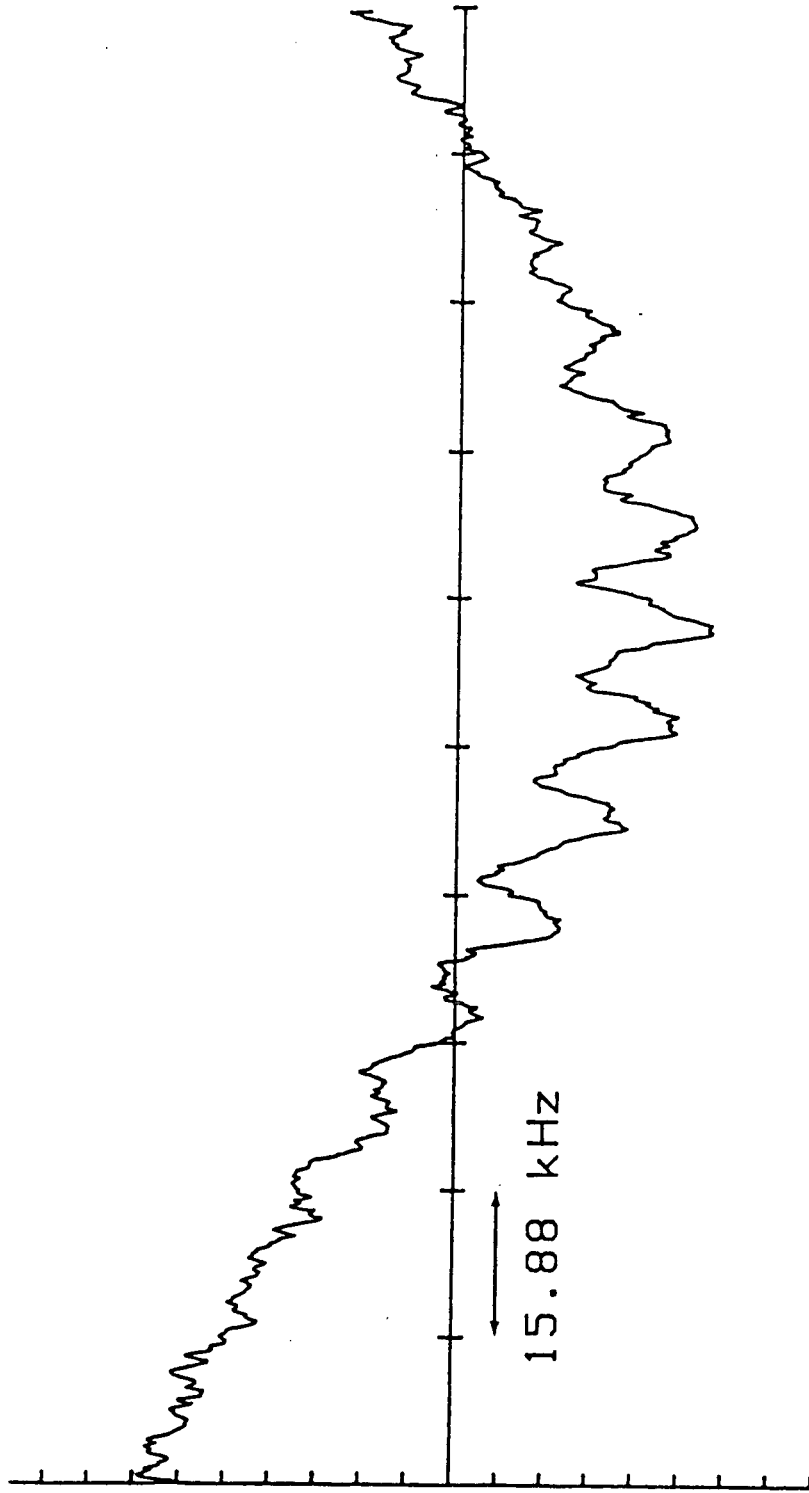
La très bonne détectivité de ce bolomètre est mise en évidence sur la figure 4.4.2, pour la raie  $P(4)A_1$  de  $SF_6$ . Le signal élargi par effet Doppler correspond en effet à une puissance absorbée d'environ  $4 \times 10^{-11} W$ . Le rapport signal sur bruit correspondant (50 dans une bande passante de 1 Hz) illustre une détectivité au niveau de  $8 \times 10^{-13} W/\sqrt{Hz}$ . La puissance du laser n'est pas encore assez élevée pour que le trou de saturation soit bien apparent comme sur la figure 4.4.3. A l'optimum d'intensité pour les franges de Ramsey, ce trou de saturation est environ la moitié du signal linéaire. Sa largeur (120 kHz FWHM) est essentiellement déterminée par le temps de transit fini à travers le faisceau de rayon 2,3 mm et par l'élargissement par saturation correspondant à une impulsion  $\pi/2$ .

Après une soigneuse optimisation de l'intensité du laser et un temps d'intégration de 20 minutes (avec une constante de temps équivalente de 2,5 seconde par point) les franges de Ramsey pour la raie  $P(4)F_1$  apparaissent clairement au fond du trou de saturation sur la figure 4.4.4. La demi-largeur à mi-hauteur de ces franges vaut 2,6 kHz et correspond bien à une distance de 4,5 cm entre zones.

Le signal de franges de Ramsey correspond à une puissance d'environ  $6 \times 10^{-12}$  Watt et vaut 1/4 du trou de saturation qui lui-même fait 1/2 du signal total. Le rapport signal sur bruit de 6 pour une bande passante de 1 Hz et les difficultés de la détection bolométrique à 1,7 K nous ont empêché de faire une étude quantitative du signal de franges en fonction de l'intensité du laser et d'observer les signaux de franges de Ramsey sur les autres composantes  $P(4)A_1$  et E, dans de bonnes conditions (Fig. 4.4.5).

Par comparaison avec les signaux de franges à basse résolution (100 kHz) présentés au paragraphe 4.3, la hauteur très faible (1 mm) de ce bolomètre fait en effet perdre un facteur  $\sim 5$  sur le nombre de molécules du jet qui contribuent au signal. Ces difficultés, et le calcul d'ordre de grandeur du signal développé au paragraphe 4.3.4, nous ont alors incités à tenter une détection optique, directe, de l'absorption du jet, sur le faisceau laser.

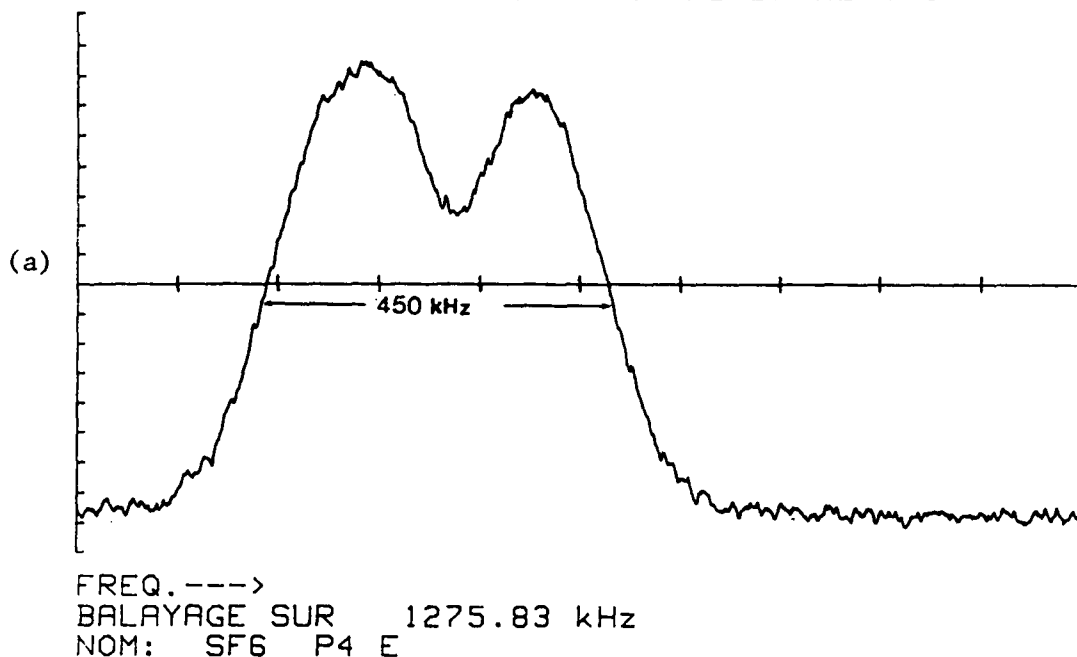
FR. INIT=228329.39 kHz FR. FIN=228488.20 kHz  
MOYENNE APRES 25 BALAYAGES DE DUREE 51 SEC



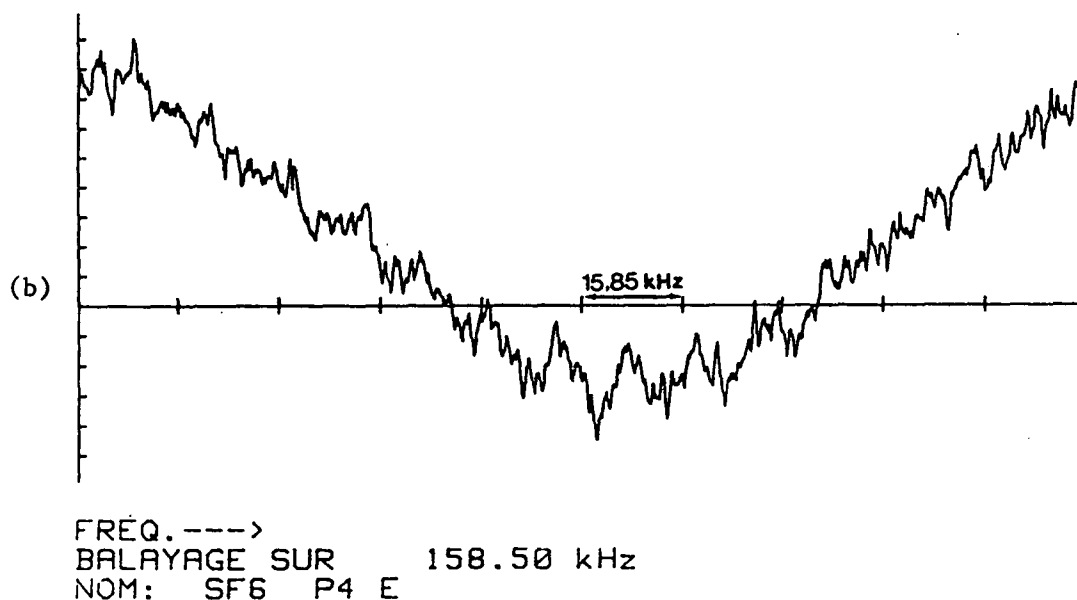
FREQ. --->  
BALAYAGE SUR 158.81 kHz  
NOM: SF6 P4 F1

FIGURE 4.4.4 - Franges de Ramsey à haute résolution (largeur totale à mi-hauteur : 5,2 kHz) obtenues avec le système optique de la figure 4.4.1 et détection bolométrique. Transition  $P(4)F_1$  de  $SF_6$ .  
La constante de temps est de 0,1 seconde et 25 balayages de durée 51 secondes ont été additionnés.  
Le faisceau laser est modulé en amplitude à la fréquence de 80 Hz.

FR.INIT=240006.85 kHz FR.FIN=241282.68 kHz  
MOYENNE APRES 3 BALAYAGES DE DUREE 108 SEC



FR.INIT=240389.91 kHz FR.FIN=240548.41 kHz  
MOYENNE APRES 3 BALAYAGES DE DUREE 108 SEC



**FIGURE 4.4.5** (a) Signal bolométrique pour la raie P(4)E de SF<sub>6</sub> avec quatre ondes progressives. Trois balayages de durée 108 s et avec une constante de temps de 0,3 seconde ont été additionnés. Le laser est modulé en amplitude à 80 Hz.

(b) Les franges de Ramsey à haute résolution (largeur totale : 5,2 kHz) pour la raie P(4)E sont à la limite de détectivité du bolomètre utilisé.

#### 4.4.2 DETECTION OPTIQUE DES FRANGES DE RAMSEY A HAUTE RESOLUTION [38]

La figure 4.4.6 présente les éléments essentiels du montage utilisé. Comme nous nous intéressons ici à la mesure de la très faible énergie absorbée par le jet sur le faisceau laser, un petit miroir recueille la lumière après ses quatre interactions avec le jet supersonique. Le faisceau laser est ensuite envoyé sur un détecteur HgCdTe de puissance équivalente de bruit  $5 \times 10^{-13} \text{ W}/\sqrt{\text{Hz}}$  à 77 K, situé à l'extérieur de la chambre de mesure du jet supersonique.

Cette fois, c'est le jet supersonique qui est haché à une fréquence  $\nu$ . Une détection synchrone à la fréquence  $\nu$  extraira la partie modulée à  $\nu$  du signal provenant du détecteur HgCdTe. La bande passante de ce détecteur, (supérieure à 100 MHz) permet de lever la contrainte de modulation à basse fréquence imposée par le temps de réponse du bolomètre. Pour que le bruit d'amplitude du laser soit aussi réduit que possible, une fréquence de modulation supérieure à 10 kHz eut été souhaitable. Se référer à la discussion du paragraphe 2.2.3. Cependant, pour des raisons technologiques (moteur sous vide, vibrations), une fréquence de modulation comprise entre 1 et 2 kHz a été choisie et réalisée à l'aide d'un disque tournant à basse vitesse, percé d'une quarantaine de trous de diamètre 2 mm, laissant passer tour à tour le jet supersonique.

La figure 4.4.7 présente un enregistrement typique des signaux observés par détection optique pour la raie  $P(4)F_1$  de  $\text{SF}_6$ . Le fond élargi par effet Doppler reflète la distribution des vitesses suivant l'axe optique ( $v_z$ ) de toutes les molécules du jet qui croisent le faisceau et non plus seulement de celles qui atteignent le bolomètre. Ce profil d'absorption linéaire est notablement plus large (1,9 MHz à mi-hauteur) que le signal provenant du bolomètre (400 kHz). Il présente un "flanc raide" du côté des hautes fréquences qui est probablement dû à un défaut d'alignement entre les trous du disque tournant et le jet supersonique. ("Effets de bords" des trous de diamètre 2 mm). Pour une puissance laser de 25-30  $\mu\text{W}$ , ce signal linéaire correspond à une puissance absorbée par le jet supersonique de  $10^{-9} \text{ W}$ . Le contraste s'élève donc à  $3,3 \times 10^{-5}$ . Le rapport signal sur bruit ( $\sim 200$  pour une seconde d'intégration) est environ quatre fois meilleur que celui qui est obtenu par détection bolométrique..

Au sommet du profil, on distingue le trou de saturation (largeur totale à mi-hauteur :  $\sim 130 \text{ kHz}$ ) élargi par temps de transit fini ( $\frac{1}{4} \frac{u}{w_0}$ ) et



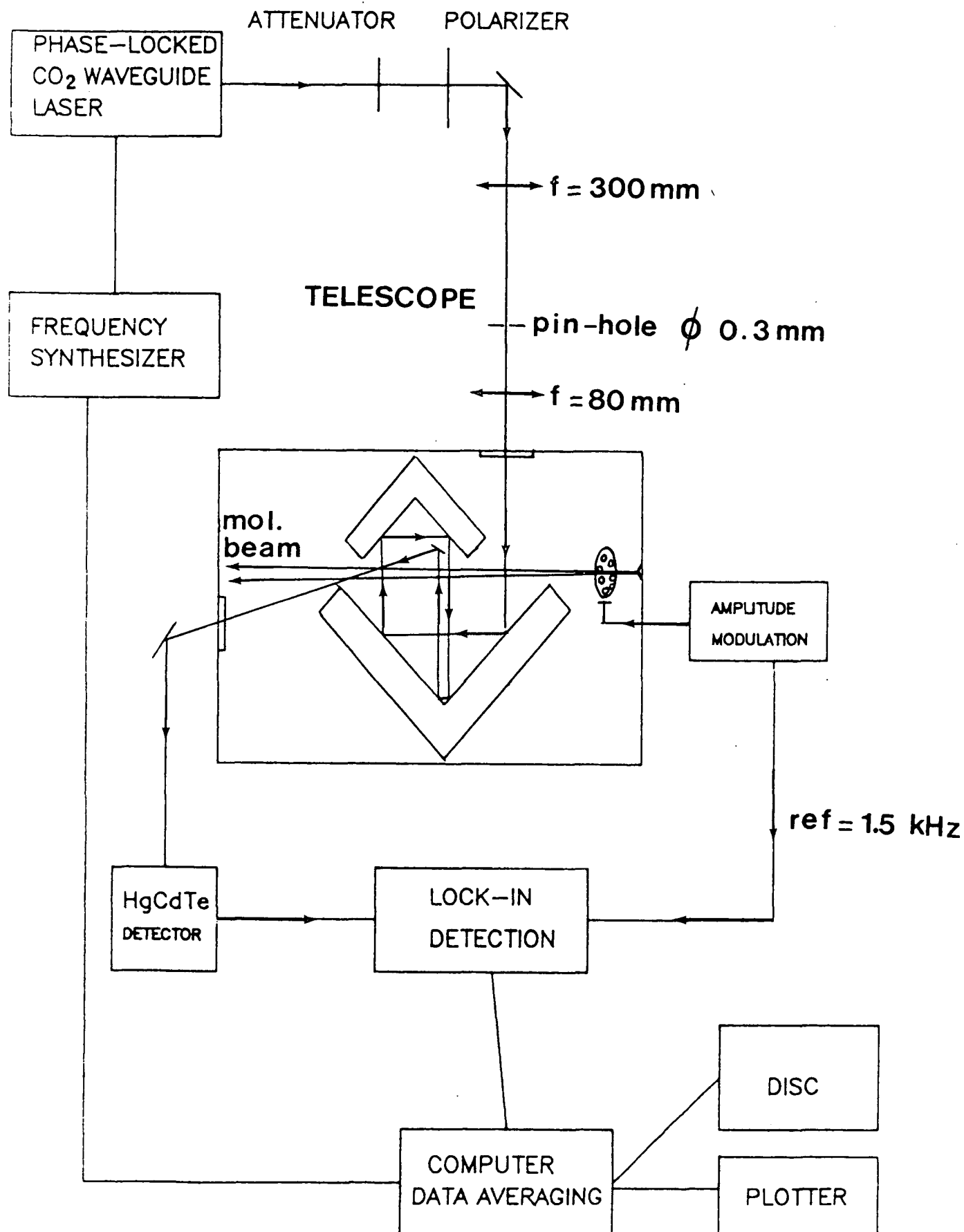


FIGURE 4.4.6

Montage expérimental utilisé pour la détection optique des franges de Ramsey à très haute résolution sur jet supersonique. Le diamètre  $2w$  du faisceau laser au niveau des quatre zones d'interaction avec le jet moléculaire est de 4,6 mm. La distance entre les ondes se propageant dans la même direction est de 4,5 cm.

légèrement par saturation. Les franges de Ramsey sont clairement visibles dans ce trou de saturation, lorsque les données sont accumulées pendant une vingtaine de minutes à l'aide du micro-ordinateur qui pilote l'expérience. Elles sont présentées sur la figure 4.4.8. La période des franges est 10,42 kHz et correspond à une vitesse  $v_x$  de 940 m/s divisée par deux fois l'intervalle entre zones  $2D = 9$  cm. Le rapport signal sur bruit pour les franges est de l'ordre de 25 à 30 pour un temps d'intégration d'une seconde et pour une puissance du laser de 30  $\mu$ W.

A l'aide du gain de la chaîne de détection et de la sensibilité du détecteur HgCdTe dans les conditions de l'expérience, nous pouvons estimer la puissance absorbée correspondant à la frange centrale : celle-ci vaut environ 120 pW soit un contraste de  $4,5 \times 10^{-6}$  sur l'intensité totale du faisceau laser. La frange centrale est le tiers du trou de saturation, qui est lui-même le tiers du signal linéaire, à l'optimum d'intensité (30  $\mu$ W). Le contraste des franges est donc d'environ 10 %. Le bruit de photons associé à cette puissance  $P$  de 30  $\mu$ W s'écrit :  $\Delta P_{\text{bruit}} = (2BPh\nu/\eta)^{1/2}$  où  $B$  est la bande passante de détection,  $B = \frac{1}{4\tau}$  ( $\tau$  est le temps d'intégration),

•  $\eta$  est le rendement quantique du détecteur, de l'ordre de 0,1 dans nos expériences.

$$\Delta P_{\text{bruit}} = 1,7 \times 10^{-12} \text{ W} \quad (\text{pour } \tau = 1\text{s})$$

Le rapport signal sur bruit (théorique) devrait donc s'élever à environ 70 (pour  $\tau = 1\text{s}$ ).

Le rapport signal sur bruit expérimental vaut sensiblement 30 ( $\tau = 1\text{s}$ ). La détection optique se fait donc à un facteur 2 à 3 environ du bruit de photons. Ce facteur s'explique de la façon suivante :

- D'une part, le bruit d'amplitude du laser, aux fréquences comprises entre 1 kHz et 2 kHz, n'est pas au niveau du bruit de photons. Se référer à la discussion du Chapitre 2, paragraphe 2.2.3 .

- D'autre part, nous avons constaté l'existence de vibrations mécaniques induites par la rotation à 40 tours par seconde du modulateur du jet supersonique. Les vibrations du système optique créent une légère modulation d'amplitude du faisceau laser. Cette modulation présente des composantes de Fourier à la fréquence de détection et se traduit par un bruit supplémentaire.

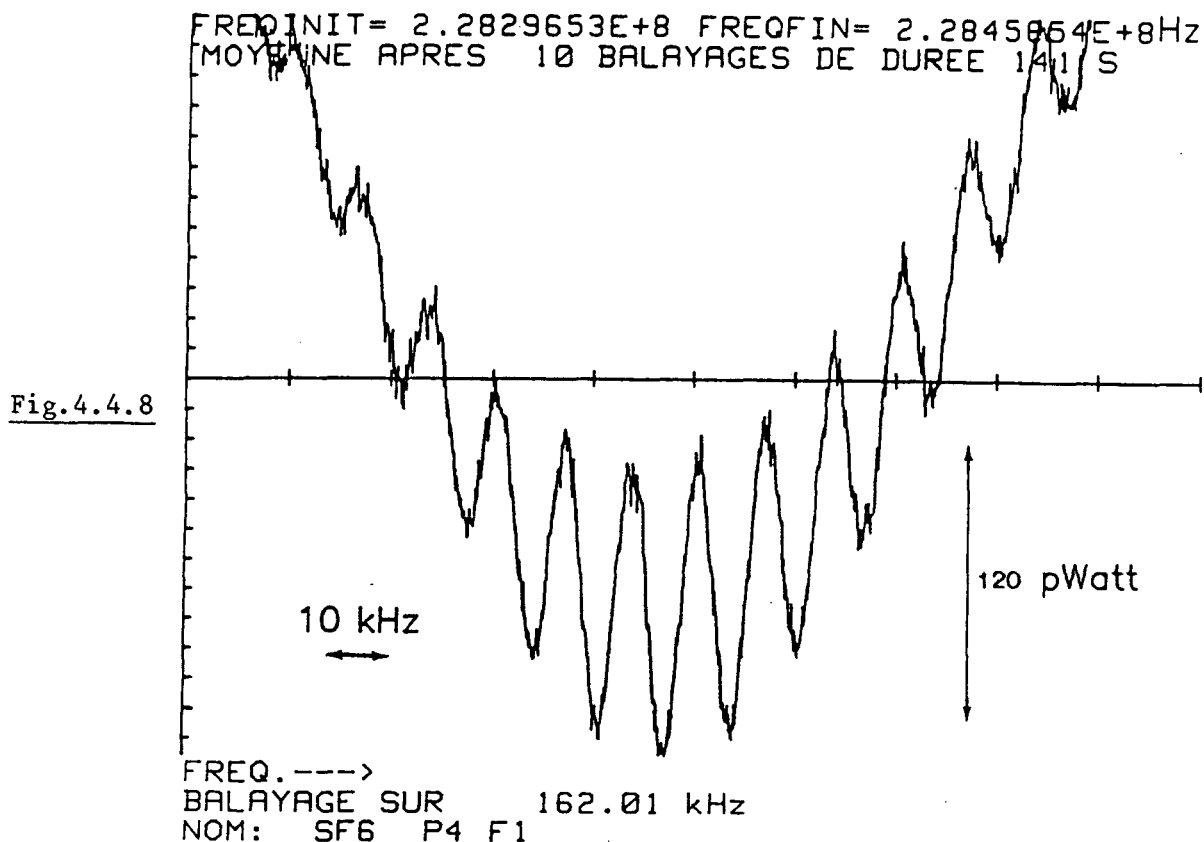
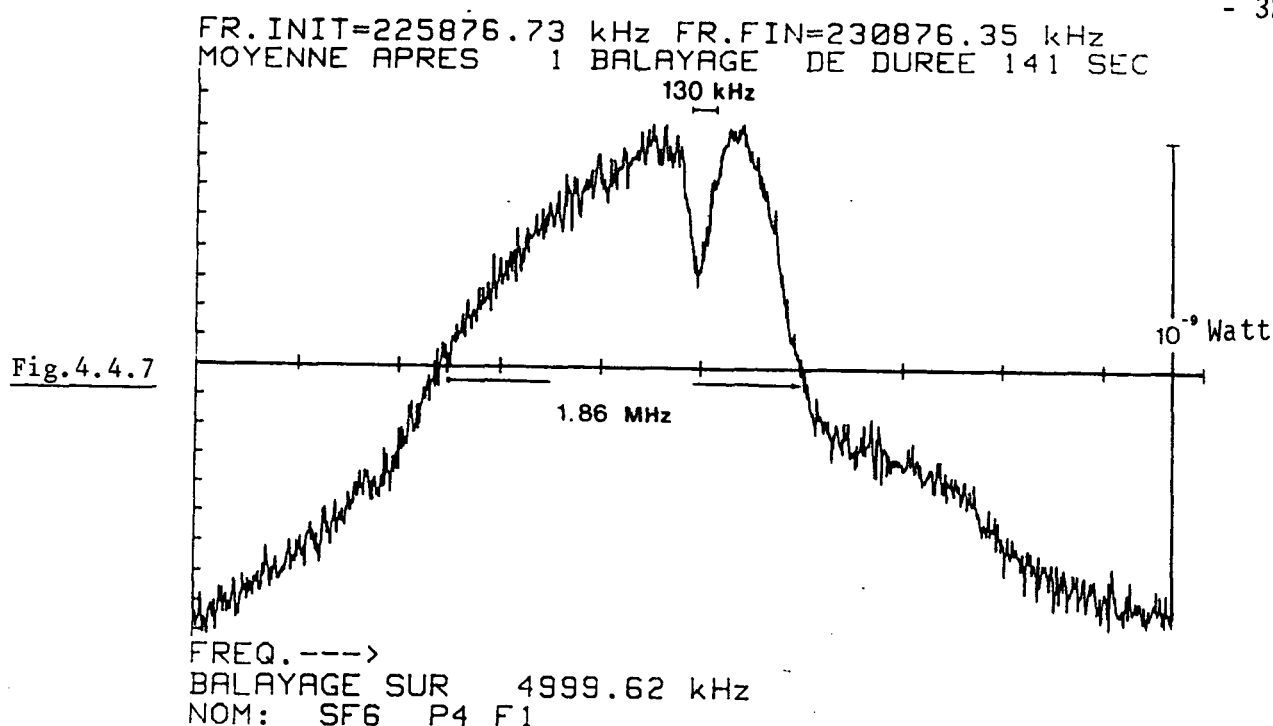


FIGURE 4.4.7 - Signal obtenu par détection optique pour la raie  $P(4)F_1$  de  $SF_6$ . Le fond élargi par effet Doppler correspond à une divergence du jet supersonique de l'ordre de 20 mrad dans cette expérience. Le flanc "raide" du côté des hautes fréquences est probablement dû à un effet de bord des trous du disque tournant modulant le jet à la fréquence de 1,5 kHz.

FIGURE 4.4.8 - Franges de Ramsey obtenues par détection optique, pour la raie  $P(4)F_1$  de  $SF_6$ . (Centre du spectre de la Figure 4.4.7). Dix balayages de constante de temps individuelle 100 ms ont été accumulés. La frange centrale correspond à une puissance absorbée de l'ordre de  $10^{-10}$  Watts.

#### 4.4.2.1 Etude en fonction de l'intensité du laser

Comme cela était prévisible, l'amplitude des franges de Ramsey s'est avérée extrêmement sensible à la puissance du faisceau laser. Tout d'abord, la figure 4.4.9 illustre la variation avec l'intensité du faisceau, de l'ensemble du signal d'absorption. Le signal d'absorption linéaire passe par un optimum aux alentours de 15-20  $\mu\text{W}$ , puissance pour laquelle le trou de saturation et les franges n'ont pas encore atteint leur taille maximum. Celle-ci est obtenue pour une puissance de l'ordre de  $(30 \pm 5 \mu\text{W})$ , en bon accord avec la valeur théorique de 33  $\mu\text{W}$  pour l'impulsion  $\pi/2$  déduite de la formule démontrée au Chapitre 3 :

$$P_{\pi/2} = \frac{\pi}{64} \frac{\hbar}{\alpha} \frac{v_x^2}{(\mu/e)^2}$$

Rappelons que c'est pour une impulsion  $\pi/2$  que la polarisation qui précède librement entre les zones de champ est maximale.

Au-delà de l'impulsion  $\pi/2$  (30  $\mu\text{W}$ ), l'amplitude des franges décroît extrêmement vite avec l'intensité et elles ne sont plus observées au-delà de 100  $\mu\text{W}$ . La figure 4.4.10 présente simultanément la taille du signal d'absorption linéaire, du trou de saturation et des franges de Ramsey en fonction de l'intensité. En regard, sont portés les mêmes signaux obtenus avec la théorie en ondes planes du Chapitre 1.

#### 4.4.2.2 Comparaison avec la théorie en ondes planes. Discussion

Il est aisé d'introduire les paramètres expérimentaux (taille du faisceau  $2w_0 = 4,6 \text{ mm}$ , distance entre zones  $D = 4,5 \text{ cm}$  et vitesse  $v_x = 940 \text{ m/s}$ ) dans les résultats de la théorie en ondes planes développée au Chapitre 1. On suppose que les quatre champs ont la même intensité (créneaux carrés de largeur  $2w_0$ ) et on néglige la relaxation. A l'optimum d'intensité, le signal a l'allure présentée sur la figure 4.4.11. Les variations en fonction de l'intensité, de la taille de la frange centrale, du trou de saturation, et du signal élargi par effet Doppler, sont comparées aux résultats expérimentaux sur la figure 4.4.10. Il faut noter que ces signaux en ondes planes n'ont une valeur indicative que jusqu'à l'impulsion  $\pi/2$  ou légèrement

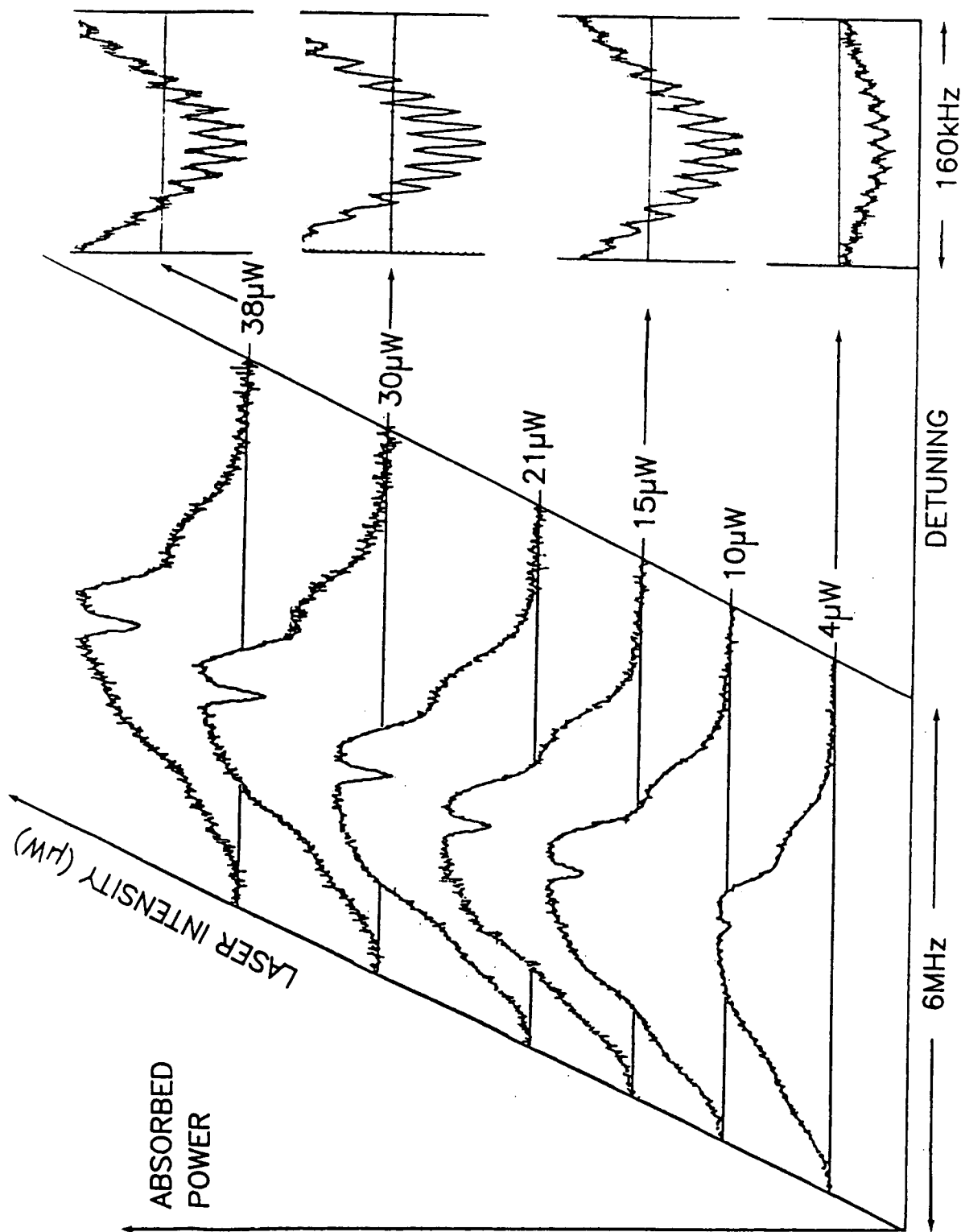


FIGURE 4.4.9

Variation avec l'intensité du faisceau laser du signal d'absorption (un balayage de constante de temps 0,1 s) et du signal de franges de Ramsey (cinq balayages de constante de temps 0,1 s et dix balayages pour les franges à l'optimum d'intensité (30  $\mu W$ )). Notez que l'optimum d'absorption linéaire est atteint pour 15-20  $\mu W$  alors que l'optimum pour les franges est de l'ordre de 30  $\mu W$ .

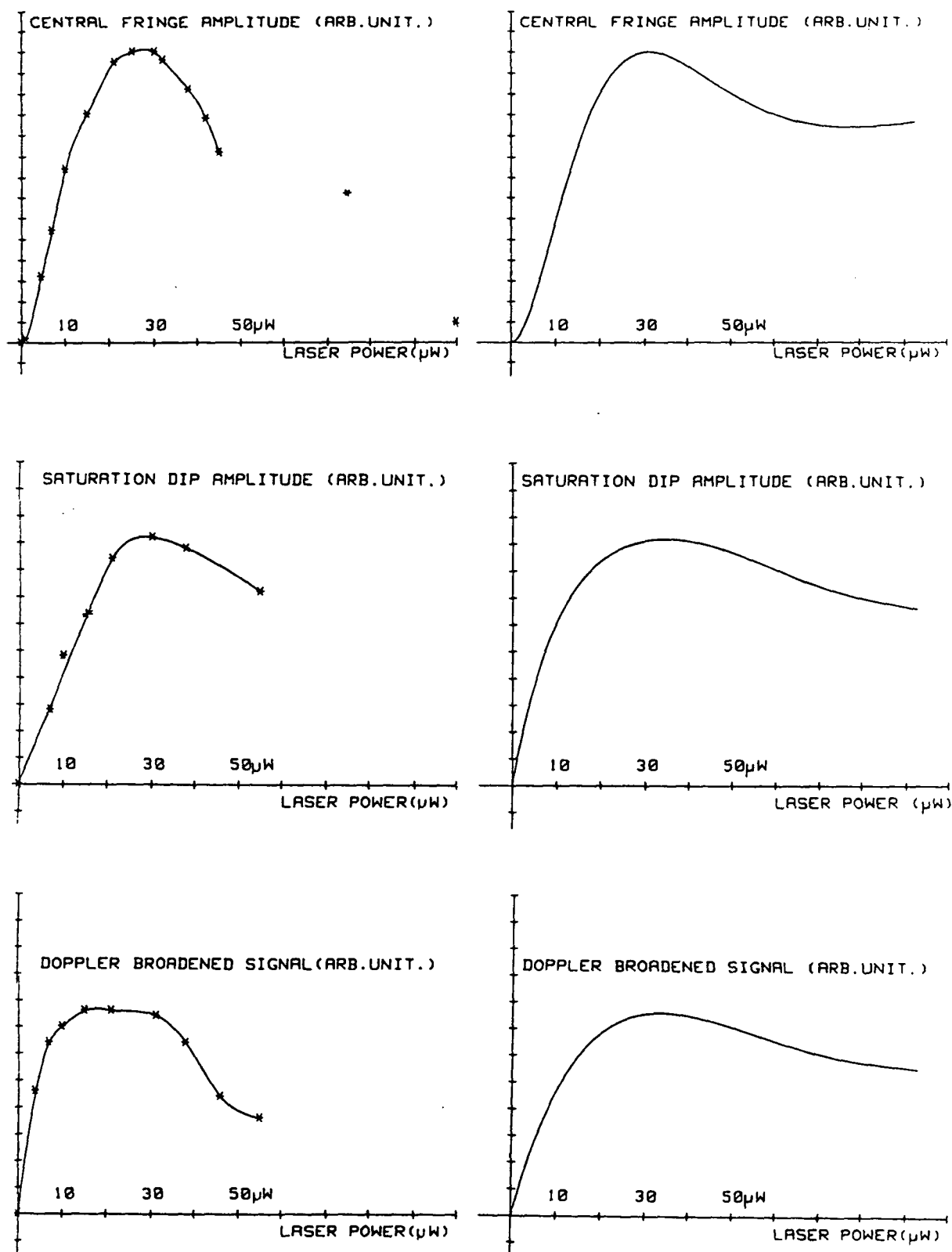


FIGURE 4.4.10

Variation avec l'intensité du signal élargi par effet Doppler, du trou de saturation et du signal de franges de Ramsey. Raie  $P(4)F_1$  de  $SF_6$ . A gauche points expérimentaux. A droite, théorie en ondes planes avec les paramètres de l'expérience, divergence du jet (20 mrad), vitesse (940 m/s), diamètre des faisceaux (4,6 mm) et distance entre zones (4,5 cm).

au-delà. En champ laser plus intense, en effet, le comportement d'un système à deux niveaux éclairé par un (ou plusieurs) faisceaux gaussiens, diffère très notablement du comportement obtenu lorsqu'il est soumis à une seule onde plane. Ceci est illustré sur les figures 1.3.1 et 1.3.2.

L'apparition des bandes latérales dans l'espace des vitesses  $v_z$ , alors que les oscillations de Rabi restent en phase  $\forall v_z$  pour un faisceau gaussien, rend caduque toute comparaison quantitative des signaux au-delà de l'impulsion  $\pi/2$  environ.

A l'optimum d'intensité (impulsion sensiblement  $\pi/2$ ), le signal théorique présente un contraste d'environ 42% pour la frange centrale. Le contraste expérimental ne s'élève qu'à 11%. Deux raisons majeures expliquent cette différence :

- Tout d'abord, la structure hyperfine de la raie  $P(4)F_1$  s'étend sur une vingtaine de kHz. Celle-ci est présentée sur la figure 4.2.1. Elle comprend six composantes principales dont les intensités (en champ faible) et les positions sont rappelées dans le tableau 4.1. Cette structure notablement plus large que la demi-largeur à mi-hauteur des franges de Ramsey (2,6 kHz) tend à les brouiller. Ceci est illustré sur la figure 4.4.12 qui présente le système de franges obtenu lorsque l'on tient compte de cette structure hyperfine. Celle-ci est responsable d'une réduction des franges d'un facteur sensiblement 2.

- La dimension verticale du jet (direction  $y$ ) n'est plus négligeable devant le diamètre du faisceau  $2w_0 = 4,6$  mm (Fig. 4.4.13).

En supposant que le jet supersonique possède la symétrie de révolution autour de l'axe  $Ox$ , la largeur  $H$  du signal d'absorption linéaire ( $H = 1,9$  MHz à mi-hauteur) nous donne un ordre de grandeur de la divergence du jet dans notre expérience, dans l'hypothèse où l'écorceur est ponctuel. La largeur à mi-hauteur de la distribution des vitesses  $v_z$  vaut  $2\Delta v_z = \lambda \times H = 20$  m/s.

La divergence associée s'écrit :

$$2\alpha_0 = \frac{2\Delta v_z}{v_x} \sim 20 \text{ mrad} = \frac{2\Delta v_y}{v_x} \text{ par hypothèse.}$$

En conséquence, (Fig.4.4.13), la largeur à mi-hauteur du jet, suivant la direction  $y$ , vaut sensiblement 3 mm au niveau de la première zone d'interaction

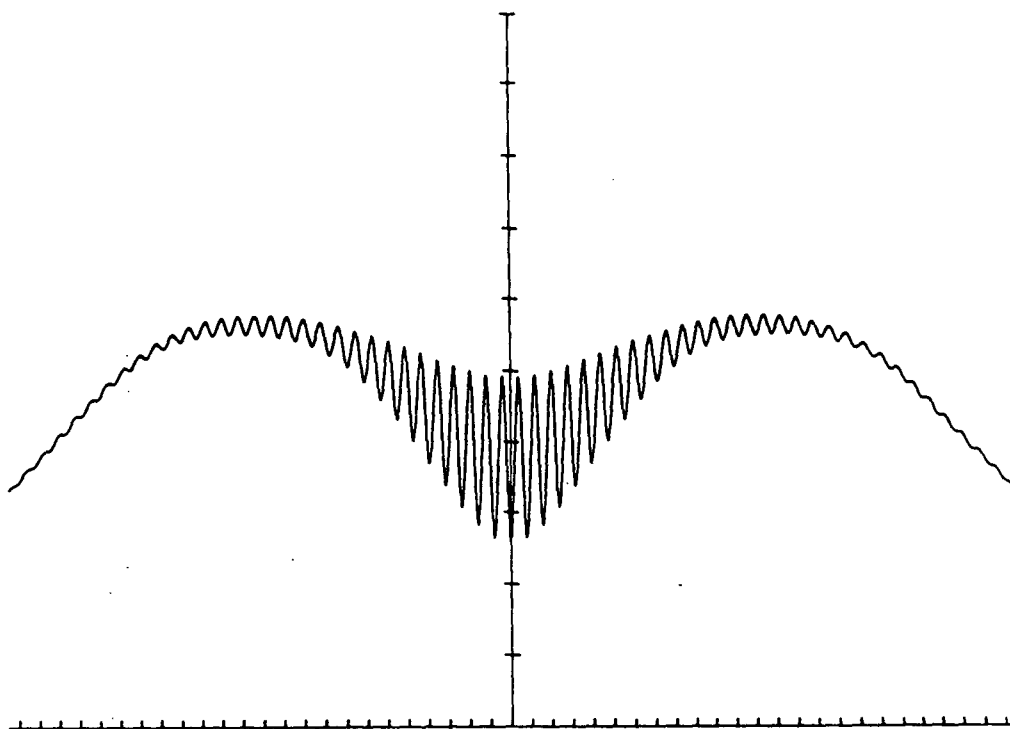


FIGURE 4.4.11

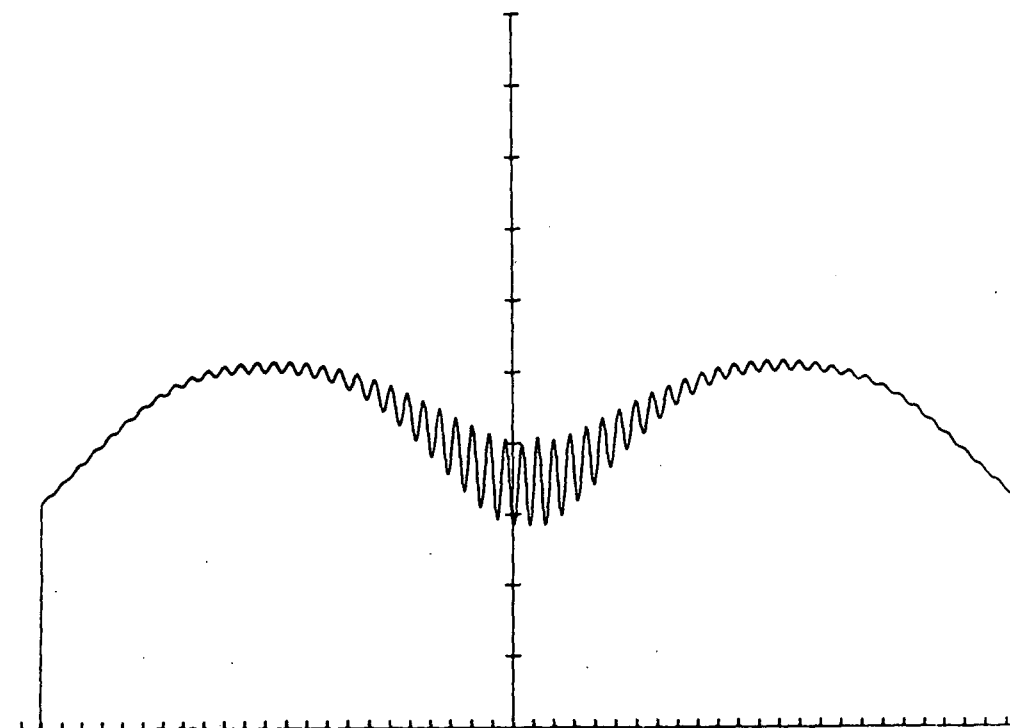


FIGURE 4.4.12

Fig. 4.4.11 - Signal de franges de Ramsey obtenu avec la théorie en ondes planes du Chapitre I et avec les paramètres de l'expérience à l'optimum d'intensité. (Impulsion  $\pi/2$ ). Le contraste de la frange centrale est de 42 %.

Fig. 4.4.12 - Mêmes conditions que pour la Fig. 4.4.11, mais on a introduit la structure hyperfine de la transition  $P(4)F_1$  de  $SF_6$ . Le contraste de la frange centrale n'est plus que de 23 %. Seules ont été prises en compte les six composantes principales.



TABLEAU 4.1

LES SIX COMPOSANTES PRINCIPALES DE LA RAIE  $P(4)F_1$  DE  $SF_6$   
ET LEURS INTENSITES RELATIVES EN CHAMP FAIBLE

Composante	Intensité	Ecart en fréquence (kHz)
1	1	0
2	0,668	10,5
3	0,721	12,12
4	0,491	13,70
5	0,300	18,53
6	0,312	18,74

Les autres composantes font moins de 10% de la composante 1 .

# CONFIGURATION DU JET ET DES 4 FAISCEAUX LASER

$2\alpha = 20 \text{ mrad.}$

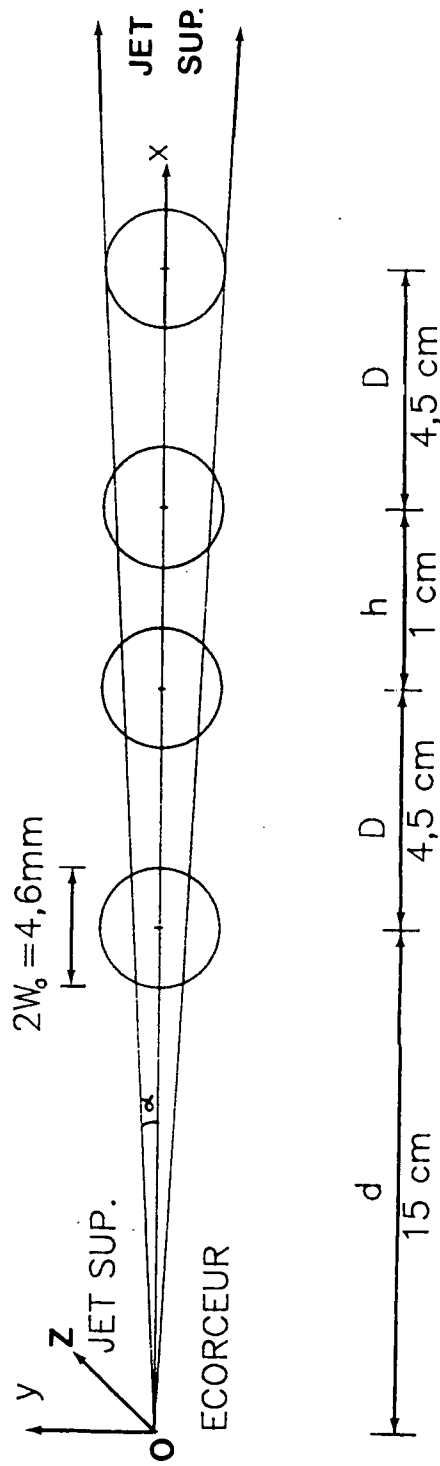


FIGURE 4.4.13

Géométrie du jet supersonique et des quatre zones d'interaction pour les franges de Ramsey.  
La divergence du jet et le diamètre des faisceaux ont été exagérés pour la clarté de la figure.

et 5 mm au niveau de la quatrième zone . Ces dimensions ne sont pas négligeables devant le diamètre  $2w_0 = 4,6$  mm des faisceaux gaussiens. Il s'ensuit que la pulsation de Rabi,  $\Omega$ , dans chaque zone de champ est maintenant une fonction de  $y$  et que par conséquent les quatre pulsations de Rabi ( $\Omega_i$   $i=1, \dots, 4$ ) sont différentes . Il en résulte une nouvelle diminution de la taille des franges.

En supposant que la répartition des vitesses  $v_y$  , ou ce qui est équivalent, la répartition des angles  $\alpha$  est gaussienne, de largeur à  $1/e$   $\alpha_m$  , le signal s'écrit :

$$S = \frac{2}{\sqrt{\pi} \alpha_m} \int_0^\infty d\alpha \exp - \left( \frac{\alpha}{\alpha_m} \right)^2 F \left( \Omega_0 \exp - \frac{(\alpha d)^2}{w_0^2}, \Omega_0 \exp - \frac{\alpha^2 (d+D)^2}{w_0^2}, \right. \\ \left. \Omega_0 \exp - \frac{\alpha^2 (d+D+h)^2}{w_0^2}, \Omega_0 \exp - \frac{\alpha^2 (d+2D+h)^2}{w_0^2} \right)$$

où  $F(\Omega_1, \Omega_2, \Omega_3, \Omega_4)$  est la fonction (somme des formules (1.24) et (1.25) du Chapitre 1) qu'il faut intégrer sur  $v_z$  , et  $\alpha_m = \sqrt{2} \alpha_0$  .

Il est clair qu'il y aurait intérêt à agrandir le diamètre du faisceau de façon à :

- 1) minimiser cet effet de distribution gaussienne d'intensité suivant la dimension verticale ( $y$ ) .
- 2) faire contribuer au signal toutes les molécules du jet supersonique puisque, dans cette expérience, l'absorption des molécules du jet étant détectée sur le faisceau laser, nous ne sommes plus limités par la faible dimension verticale du bolomètre.

Cependant, cet objectif va à l'encontre de la nécessité d'avoir un temps de vol très court dans chaque zone de champ pour bénéficier du trou le plus large possible dans la distribution des vitesses  $v_z$  . Il faudrait pouvoir réaliser des faisceaux elliptiques très petits suivant  $Ox$  et grands suivant  $Oy$ , tout en présentant des fronts d'ondes plans.

#### 4.5 COMPARAISON ENTRE LA DÉTECTION OPTIQUE ET LA DÉTECTION BOLOMÉTRIQUE

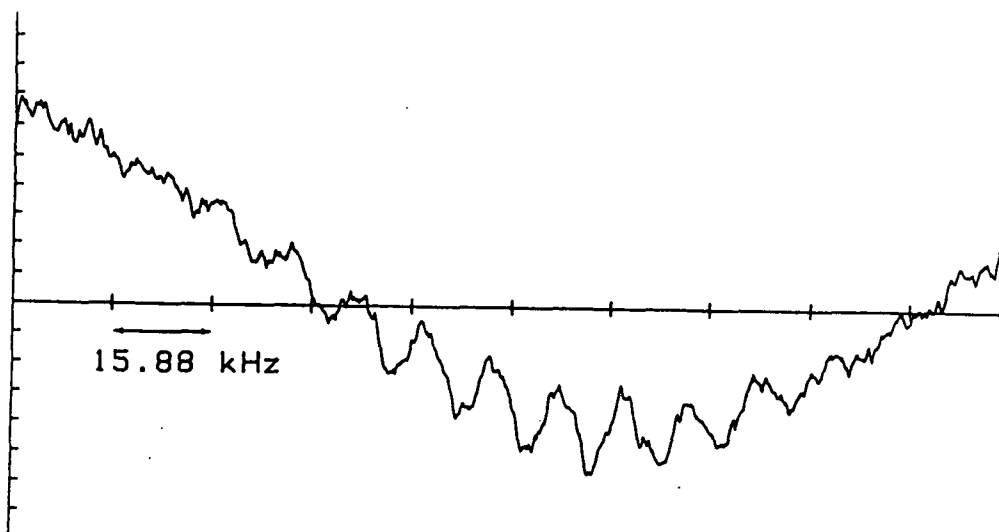
Sur la Figure 4.5.1 sont comparés les signaux de franges de Ramsey à haute résolution, pour la raie  $P(4)F_1$  de  $SF_6$ , obtenus par détection bolométrique ou par détection optique directe sur le faisceau laser. La détection optique est environ quatre fois meilleure que la détection bolométrique, à l'optimum d'intensité pour les franges ( $30 \mu W$ ). Le bolomètre semi-conducteur employé pour cette comparaison (le plus sensible des bolomètres utilisés dans nos expériences) était cependant de très faible dimension verticale (1 mm) de sorte que le nombre de molécules contribuant au signal de franges était environ cinq fois plus réduit que dans le cas de la détection optique. Malheureusement, une augmentation de la taille du bolomètre se fait au détriment de sa bande passante (détecteur thermique) et de sa puissance équivalente de bruit.

Il faut cependant noter que la méthode de détection optique sur le faisceau laser lui-même dépend essentiellement du niveau de bruit de photons à l'optimum d'intensité. Pour la bande  $\nu_3$  de  $SF_6$ , le moment de transition élevé (0,42 Debye) est spécialement favorable car, à l'optimum d'intensité, il conduit à une puissance raisonnable illuminant le détecteur ( $30 \mu W$ ) et donc à un niveau de bruit de photons faible (1 à 2 picowatts pour  $\tau = 1$  s). Pour des transitions faibles, le signal attendu risque de tomber en dessous du bruit de photons. Dans ce cas, le bolomètre placé sur le trajet du jet est une meilleure solution.

Il est probable que, dans le domaine visible, les méthodes (ultra-sensibles) de détection par fluorescence, ou par ionisation multiphotonique gardent l'avantage sur une détection optique directe.

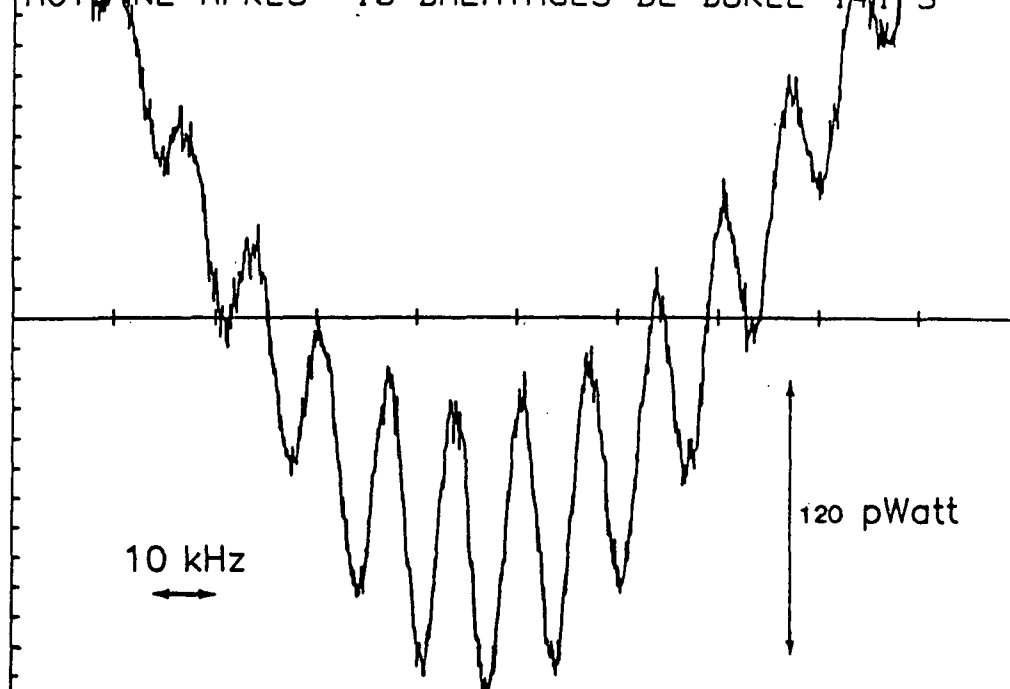
Il est cependant prévisible que les méthodes de détection optique directe, associées aux techniques de modulation à haute fréquence viendront, dans certains cas, concurrencer les méthodes de détection par fluorescence qui sont handicapées par une efficacité de collection des photons souvent très faible.

FR.INIT=228329.39 kHz FR.FIN=228488.20 kHz  
MOYENNE APRES 25 BALAYAGES DE DUREE 51 SEC



FREQ.---->  
BALAYAGE SUR 158.81 kHz  
NOM: SF6 P4 F1

FREQ.INIT= 2.2829653E+8 FREQ.FIN= 2.2845064E+8Hz  
MOYENNE APRES 10 BALAYAGES DE DUREE 14.1 S



FREQ.---->  
BALAYAGE SUR 162.01 kHz  
NOM: SF6 P4 F1

FIGURE 4.5.1

Franges de Ramsey à haute résolution (largeur totale à mi-hauteur 5,2 kHz) obtenues avec le système optique de la figure 4.4.6 pour la raie  $P(4)F_1$  et détectées soit : (a) sur le bolomètre; soit (b) directement sur le faisceau laser au moyen d'un détecteur HgCdTe à la fréquence de modulation du jet moléculaire (1,5 kHz). La constante de temps commune est de 0,1 seconde et on a accumulé vingt-cinq balayages successifs dans le premier cas et dix dans le deuxième.

## CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Dans cette conclusion, nous envisageons quelques prolongements et développements possibles des travaux décrits dans ce travail.

### 1 - FRANGES DE RAMSEY ET LASERS STABLES

1.1 La compréhension quantitative du processus de franges de Ramsey dans le domaine optique et la stabilisation en fréquence des lasers au niveau de la dizaine de Hertz, permettent d'envisager maintenant une expérience sur jet supersonique beaucoup plus ambitieuse du point de vue de la résolution. Il ressort en effet des Chapitres 1 et 4 de ce travail que le signal de franges de Ramsey ne décroît pas au fur et à mesure que l'on augmente la distance entre zones (c'est-à-dire la résolution), pourvu que l'on n'approche pas de trop près la largeur naturelle ! (de l'ordre de quelques Hertz à quelques dizaines de Hertz pour les transitions de vibration-rotation dans la région spectrale de 10 microns)\*. Une chambre de mesure pour le jet, beaucoup plus volumineuse, associée à une optique (en ondes progressives) comparable à celle qui est actuellement utilisée dans la grande cuve d'absorption, permettrait de gagner facilement un facteur 10 à 20 sur la résolution, soit 260 Hz de demi-largeur à mi-hauteur pour les franges sur  $SF_6$  avec 45 cm entre zones. De plus, si la bonne monochromaticité des vitesses axiales ( $v_x$ ) des molécules du jet est un avantage pour créer des conditions d'excitation identiques pour toutes les molécules, la vitesse d'ensemble des molécules est élevée (940 m/s) et constitue un inconvénient pour l'obtention d'une très haute résolution. L'utilisation de l'argon à la place de l'hélium comme gaz porteur, ferait gagner un facteur sensiblement trois sur la résolution.

De même, il est clair que tout moyen permettant de ralentir le jet tout en lui conservant une bonne densité, serait un progrès décisif. De plus, l'absorption du jet détectée sur le faisceau laser lui-même, peut être optimisée en utilisant un jet supersonique aplati suivant la direction Oz, de façon à augmenter l'épaisseur optique du jet.

---

\* Ceci pour un jet monocinétique parallèle. Pour un jet réel, il subsistera la diminution due à l'angle solide lorsque l'on éloigne les zones d'interaction.

D'un point de vue spectroscopique, pour exploiter pleinement le potentiel de cette technique des franges de Ramsey, il serait souhaitable de ne pouvoir observer que la frange centrale. A cause du grand nombre de franges latérales, la structure hyperfine de la transition  $P(4)F_1$  ne manifeste sa présence que par une réduction du contraste des franges. Cette structure hyperfine exclut le choix de la molécule  $SF_6$  pour réaliser un très bon étalon de fréquence dans l'infrarouge.

Ainsi, très schématiquement, il reste deux obstacles principaux à surmonter pour espérer réaliser un étalon optique de fréquence de hautes qualités, fondé sur la technique des franges de Ramsey sur jet supersonique :

1) Il existe peu de molécules simples exemptes de structure hyperfine et possédant une bande d'absorption forte dans la région spectrale de  $10\ \mu m$ , facilement utilisables en jet supersonique. Les molécules  $O_3$ ,  $OsO_4$ ,  $OCS$ , ne semblent pas encore avoir été utilisées en jet supersonique.\*

2) Le nombre de transitions de valeur de  $J$  faible en coïncidence avec un laser à  $CO_2$  guide d'ondes est encore très limité. Notons toutefois que la molécule  $OCS$  (exempte de structure hyperfine) possède une transition de valeur de  $J$  égale à cinq en coïncidence avec un laser guide d'ondes, qui pourrait être exploitée [157, 158].

Une solution à ce dernier problème se dessine actuellement grâce au développement de sources accordables sur plusieurs dizaines de GigaHertz autour de chaque raie de  $CO_2$ , qui utilisent des modulateurs électro-optiques rapides [121, 159]. A partir d'un laser à  $^{12}C^{16}O_2$  (ou l'une de ses variétés isotopiques) de quelques Watts, il est possible d'obtenir un niveau de puissance de plusieurs dizaines de milliwatts dans une bande latérale située à plusieurs GigaHertz de la porteuse. Il doit être possible de communiquer à cette bande latérale la pureté spectrale du laser à  $CO_2$  de départ, en utilisant un générateur très stable en fréquence pour générer la fréquence de décalage.

---

\* Un jet supersonique d' $OCS$  a été réalisé par les auteurs de la référence [185].

1.2 La pureté spectrale des lasers à  $\text{CO}_2$  (de l'ordre de 10 Hertz actuellement) ainsi que la variance d'Allan pour les temps longs ( $4 \times 10^{-14}$  pour  $T = 30$  s) sont très certainement perfectibles d'un ou deux ordres de grandeur.

Une limitation actuelle à ces résultats provient de l'existence de fluctuations très lentes (sur plusieurs minutes) du fond sur lequel se dessine la raie de saturation. (Dérives de pression dans les cuves par réaction chimique avec les parois, par exemple). Ces fluctuations doivent pouvoir être considérablement réduites par l'utilisation de techniques de détection sur fond noir (comme, par exemple, la technique de modulation du faisceau saturant et détection sur le faisceau sonde [73, 74]) associées à l'emploi de cristaux électro-optiques permettant d'introduire la modulation à l'extérieur du laser.

Parallèlement à l'étude et à la réduction des instabilités de fréquence des lasers, il doit être possible, à l'aide d'un interféromètre de Michelson avec coin de cube, de réduire les fluctuations angulaires du faisceau laser au niveau de  $10^{-10}$  ou  $10^{-11}$  radian .

1.3 Un prolongement tout à fait intéressant des calculs théoriques présentés au Chapitre 1 a trait à l'étude du problème des franges de Ramsey lorsque l'on utilise un nombre  $n$  de zones de champ très supérieur à 4. L'idée initiale, proposée par J.J. SNYDER, J. HELMCKE et D. ZEVEGOLIS dans la référence [160], était de réaliser des franges de Ramsey dans le domaine temporel sur un jet d'atomes de calcium excités par un laser colinéaire au jet. Il est ainsi possible de faire une sélection de vitesse et par là de contrôler l'effet Doppler du second ordre [161]. C'est en effet l'élargissement lié à l'effet Doppler du second ordre qui était la principale limitation à l'exactitude et à la reproductibilité du système de franges de Ramsey à ultra-haute résolution (1 kHz) observées auparavant par R.L. BARGER [22]. Il est clair que dans une telle expérience de franges de Ramsey temporelles, la cadence des impulsions doit être aussi élevée que possible, de façon à ce qu'un maximum d'atomes du jet participe au signal. Le problème théorique posé était alors d'étudier l'influence de l'effet de recul sur le signal de franges, lorsque l'effet de recul est résolu et lorsque le



système atomique est soumis à une succession d'impulsions équidistantes, deux impulsions se propageant dans un sens étant suivies par deux impulsions se propageant en sens inverse.

Ce problème a récemment été résolu par Ch. CHARDONNET et coll.[175]. Dans le cas général (polarisation rectiligne), le nombre d'états d'énergie-impulsion

$|a, 2m\hbar k\rangle, |b, (2m+1)\hbar k\rangle$  qui interviennent dans le problème, croît très rapidement avec le nombre  $n$  d'impulsions, de sorte que le signal de franges possède des contributions centrées aux fréquences de résonance  $\omega_0, \omega_0 \pm \delta, \omega_0 \pm 2\delta$  (et même à partir de  $n=12$ , à  $\omega_0 \pm \frac{2}{3}\delta, \dots$ ) avec  $\delta = \frac{\hbar k^2}{2M}$ . De plus, toutes ces contributions ne sont pas maximales simultanément.

Dans le cas particulier d'une polarisation  $\sigma$  ( $\sigma^+$  pour les ondes se propageant dans un sens et  $\sigma^-$  pour les ondes venant en sens inverse), il est possible, sur une transition  $J=0 \rightarrow J=1$ , de ne faire intervenir que les trois états d'énergie-impulsion  $|a, 0\rangle$  et  $|b, \pm \hbar k\rangle$ , et une seule résonance apparaît, centrée à  $\omega_0 + \delta$ . Malheureusement, le signal de franges est apparu extrêmement sensible, d'une part à l'intensité du laser, et d'autre part, au nombre d'impulsions vues par les atomes. Le signe de la frange centrale peut même s'inverser si l'intensité du laser varie. De même, à cause de la durée de vie radiative et de l'utilisation d'un jet continu, le nombre d'impulsions vues par les atomes du jet n'est pas une constante, mais peut varier de plusieurs unités, changeant par là, l'allure du signal de franges correspondant. En conséquence, il apparaît peu probable de pouvoir raisonnablement dépasser  $n=4$  impulsions vues par les atomes si l'on souhaite garder une forme de raie stable pour le signal de franges de Ramsey en excitation longitudinale.

1.4 La technique des franges de Ramsey sur jet, en ondes progressives semble également très prometteuse pour réaliser un étalon de fréquence dans le domaine visible: laser à argon stabilisé sur la molécule d'iode. Le fait de pouvoir supprimer l'une des composantes de recul en augmentant la distance entre les deux zones de champ centrales et l'absence de déplacement lumineux dans la géométrie des ondes progressives sont deux atouts importants pour cette expérience qui est en cours de montage actuellement au Laboratoire.

## 2 - SPECTROSCOPIE MOLÉCULAIRE À ULTRA-HAUTE RÉOLUTION

### EN CUVE

2.1 Si dans la confrontation jet supersonique-cuve, présentée dans ce travail, le dernier mot en ce qui concerne la plus haute résolution obtenue, revient à la cuve d'absorption (680 Hz avec  $\text{OsO}_4$ ), c'est surtout grâce à la plus grande souplesse d'utilisation de la grande cuve. A température ambiante, un grand nombre de niveaux rotationnels du niveau fondamental sont peuplés, de sorte que les coïncidences entre les transitions de vibration-rotation et un laser à  $\text{CO}_2$  guide d'ondes sont assez nombreuses.

Grâce aux techniques de stabilisation en fréquence des lasers au niveau de la dizaine de Hertz et de verrouillage en phase, grâce à l'utilisation de lasers à  $\text{CO}_2$  isotopiques et de sources accordables stables couvrant la région spectrale de 9 à 11  $\mu\text{m}$ , on peut prévoir la possibilité de faire, dans un avenir proche, une étude détaillée, au niveau du kiloHertz de résolution et d'exactitude absolue, des structures fines, hyperfines et superhyperfines apparaissant dans le spectre infrarouge de nombreuses molécules. Il serait bien étonnant que le travail qui a été effectué sur la molécule  $\text{SF}_6$ , et qui a permis de mettre en évidence un certain nombre de résultats inattendus, ne soit pas suivi d'autres surprises... C'est ainsi que les résultats sur l'ammoniac,  $\text{OsO}_4$ ,  $\text{SiH}_4$ ,  $\text{O}_3$ ,  $\text{PF}_5$  doivent être considérés comme tout à fait préliminaires. Il est clair qu'un pouvoir de résolution supérieur à  $10^{10}$  permet un test extrêmement précis des hamiltoniens hyperfins et de vibration-rotation. Il autorise également l'investigation de divers effets tunnels pouvant intervenir dans les molécules non rigides, tels que l'échange des fluors dans  $\text{PF}_5$ , ou le changement de configuration de la molécule d'ozone.

Plus généralement, les études infrarouges à très haute résolution sont importantes pour la photochimie et la séparation isotopique. ( $\text{UF}_6$  a la même structure que  $\text{SF}_6$ ). De même, le fait de pouvoir préparer les molécules de  $\text{SF}_6$  d'un jet supersonique dans un niveau rotationnel  $J=2$  ou 3 de type de symétrie parfaitement déterminé ( $A_1$ ,  $A_2$ ,  $E$ ,  $F_1$ ,  $F_2$ ) dans  $\nu_3=1$ , permettrait l'investigation de réactions chimiques élémentaires ou de processus collisionnels impliquant la molécule  $\text{SF}_6$ .

2.2 Enfin, nous mentionnerons une expérience qui n'a malheureusement pas pu être tentée dans le cadre de ce travail, malgré les efforts de plusieurs équipes de chimistes. Il s'agit de la recherche d'une éventuelle violation de parité en physique moléculaire, induite par les interactions faibles. Une telle violation de parité a récemment été observée en physique atomique, dans une très belle expérience sur l'atome de césium [173].

En physique moléculaire, il a été prédit que les deux espèces énantiomorphes (droite et gauche) d'une même molécule (par exemple  $\text{CHFClBr}$ ) pouvaient ne pas avoir exactement les mêmes niveaux d'énergie, à cause des interactions faibles [174, 183].

Une telle expérience, au niveau de  $10^{-13}$  ou  $10^{-14}$ , est tout à fait dans les capacités du spectromètre de saturation présenté dans ce travail : il s'agirait de verrouiller en fréquence un laser à  $\text{CO}_2$  sur une raie de saturation de l'espèce droite, puis de l'espèce gauche dans des conditions les plus identiques possibles, et de mesurer la fréquence de battement avec un second laser stabilisé indépendamment sur une raie de référence.

De même, les structures fines et hyperfines de ces molécules optiquement actives (droites et gauches) méritent d'être étudiées et comparées avec précision lorsqu'on sait l'importance que revêt le caractère droit ou gauche dans les processus biologiques.

## APPENDICE A

### EQUATION D'ÉVOLUTION DES ÉLÉMENTS DE MATRICE

#### DENSITÉ ENTRE ÉTATS D'ÉNERGIE-IMPULSION [41]

Dans cet Appendice, nous souhaitons écrire l'équation d'évolution des éléments de matrice densité en représentation  $|\vec{r}\rangle$  :  $\langle \vec{r} | \rho_{\alpha\beta}(\alpha_0, \vec{p}_0, t) | \vec{r}' \rangle$ . Ceux-ci sont reliés aux éléments de matrice en représentation  $\vec{p}$ , par :

$$\langle \vec{r} | \rho_{\alpha\beta}(\alpha_0, \vec{p}_0, t) | \vec{r}' \rangle = \int d^3p d^3p' \langle \vec{p} | \rho_{\alpha\beta}(\alpha_0, \vec{p}_0, t) | \vec{p}' \rangle \exp\left[i(\vec{p} \cdot \vec{r} - \vec{p}' \cdot \vec{r}')/\hbar\right] / h^3 \quad (\text{A-1})$$

Si les intégrations sur  $d^3p$  et  $d^3p'$  sont limitées à des intervalles petits devant  $\hbar k$ , mais grands devant  $\hbar/w_0$ , l'équation (A-1) peut être écrite comme une somme discrète :

$$\langle \vec{r} | \rho_{\alpha\beta}(\alpha_0, \vec{p}_0, t) | \vec{r}' \rangle = \sum_{m_\alpha, m_\beta} \langle \vec{p}_0 + m_\alpha \hbar \vec{k} | \rho_{\alpha\beta}(\alpha_0, \vec{p}_0, \vec{r}, \vec{r}', t) | \vec{p}_0 + m_\beta \hbar \vec{k} \rangle / h^3 \quad (\text{A-2})$$

$$\langle \vec{p}_0 + m_\alpha \hbar \vec{k} | \rho_{\alpha\beta}(\alpha_0, \vec{p}_0, \vec{r}, \vec{r}', t) | \vec{p}_0 + m_\beta \hbar \vec{k} \rangle$$

sera écrit simplement :

$$\langle m_\alpha | \rho_{\alpha\beta}(\vec{r}, \vec{r}') | m_\beta \rangle$$

En représentation d'impulsion, les équations d'évolution des éléments

de matrice densité s'écrivent :

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle \vec{p} | \rho_{\alpha\beta}(\alpha_o, \vec{p}_o, t) | \vec{p}' \rangle &= i\hbar \lambda(\alpha_o, \vec{p}_o, t) \delta(\vec{p} - \vec{p}_o) \delta(\vec{p}' - \vec{p}_o) \delta_{\alpha\alpha_o} \delta_{\beta\alpha_o} \\
 &- i\hbar \left[ (i\omega_{\alpha\beta} + \gamma_{\alpha\beta}) \langle \vec{p} | \rho_{\alpha\beta}(\alpha_o, \vec{p}_o, t) | \vec{p}' \rangle \right] + \left[ (\vec{p}^2 - \vec{p}'^2) / 2M \right] \langle \vec{p} | \rho_{\alpha\beta}(\alpha_o, \vec{p}_o, t) | \vec{p}' \rangle \\
 &+ \sum_{\beta'} \int d^3k \, v_{\alpha\beta'}(\vec{k}, t) \langle \vec{p} - \hbar\vec{k} | \rho_{\beta'\beta}(\alpha_o, \vec{p}_o, t) | \vec{p}' \rangle \\
 &- \sum_{\alpha'} \int d^3k \, \langle \vec{p} | \rho_{\alpha\alpha'}(\alpha_o, \vec{p}_o, t) | \vec{p}' + \hbar\vec{k} \rangle v_{\alpha'\beta}(\vec{k}, t)
 \end{aligned} \tag{A-3}$$

Pour obtenir les équations correspondantes pour les quantités  $\langle m_\alpha | \rho_{\alpha\beta}(\vec{r}, \vec{r}') | m_\beta \rangle$ , nous multiplions les deux membres de (A-3) par  $\exp [i(\vec{p} \cdot \vec{r} - \vec{p}' \cdot \vec{r}') / \hbar]$  et intégrons sur les intervalles définis plus haut :

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle m_\alpha | \rho_{\alpha\beta}(\vec{r}, \vec{r}') | m_\beta \rangle &= i\hbar \lambda(\alpha_o, \vec{p}_o, t) \delta_{\alpha\alpha_o} \delta_{\beta\alpha_o} \delta_{m_\alpha o} \delta_{m_\beta o} e^{i\vec{p}_o \cdot (\vec{r} - \vec{r}') / \hbar} \\
 &- i\hbar (i\omega_{\alpha\beta} + \gamma_{\alpha\beta}) \langle m_\alpha | \rho_{\alpha\beta}(\vec{r}, \vec{r}') | m_\beta \rangle + (1/2M) \int d^3p d^3p' (p^2 - p'^2) \\
 &\exp \left[ i(\vec{p} \cdot \vec{r} - \vec{p}' \cdot \vec{r}') / \hbar \right] \langle \vec{p} | \rho_{\alpha\beta}(\alpha_o, \vec{p}_o, t) | \vec{p}' \rangle \\
 &+ \sum_{\beta'} \int d^3k \, v_{\alpha\beta'}(\vec{k}, t) \exp i\vec{k} \cdot \vec{r} \int d^3p d^3p' \langle \vec{p} - \hbar\vec{k} | \rho_{\beta'\beta}(\alpha_o, \vec{p}_o, t) | \vec{p}' \rangle \\
 &\exp \left\{ i \left[ (\vec{p} - \hbar\vec{k}) \cdot \vec{r} - \vec{p}' \cdot \vec{r}' \right] / \hbar \right\} \\
 &- \sum_{\alpha'} \int d^3k \, v_{\alpha'\beta}(\vec{k}, t) \exp i\vec{k} \cdot \vec{r}' \int d^3p d^3p' \langle \vec{p} | \rho_{\alpha\alpha'}(\alpha_o, \vec{p}_o, t) | \vec{p}' + \hbar\vec{k} \rangle \\
 &\exp \left\{ i \left[ \vec{p} \cdot \vec{r} - (\vec{p}' + \hbar\vec{k}) \cdot \vec{r}' \right] / \hbar \right\}
 \end{aligned} \tag{A-4}$$

En utilisant l'approximation suivante :

$$\begin{aligned}
 (1/2M) \int d^3p d^3p' (p^2 - p'^2) < \vec{p} | \rho_{\alpha\beta}(\alpha_0, \vec{p}_0, t) | \vec{p}' > \exp \left[ i(\vec{p} \cdot \vec{r} - \vec{p}' \cdot \vec{r}') / \hbar \right] \\
 \simeq - \frac{i\hbar}{2M} \left[ 2\vec{p}_0 + (m_\alpha + m_\beta) \hbar \vec{k} \right] \cdot (\vec{\nabla}_{\vec{r}} + \vec{\nabla}_{\vec{r}'} ) < m_\alpha | \rho_{\alpha\beta}(\vec{r}, \vec{r}') | m_\beta > \\
 \simeq - i\hbar (\vec{p}_0 / M) \cdot (\vec{\nabla}_{\vec{r}} + \vec{\nabla}_{\vec{r}'} ) < m_\alpha | \rho_{\alpha\beta}(\vec{r}, \vec{r}') | m_\beta > \\
 + \hbar (m_\alpha^2 - m_\beta^2) \delta < m_\alpha | \rho_{\alpha\beta}(\vec{r}, \vec{r}') | m_\beta >
 \end{aligned} \tag{A.5}$$

$$\delta = \hbar k^2 / 2M$$

On obtient finalement :

$$\begin{aligned}
 i\hbar \left[ \partial / \partial t + (\vec{p}_0 / M) \cdot (\vec{\nabla}_{\vec{r}} + \vec{\nabla}_{\vec{r}'} ) \right] < m_\alpha | \rho_{\alpha\beta}(\vec{r}, \vec{r}') | m_\beta > = \\
 i\hbar \lambda(\alpha_0, \vec{p}_0, t) \delta_{\alpha\alpha_0} \delta_{\beta\alpha_0} \delta_{m_\beta 0} \delta_{m_\beta 0} e^{i\vec{p}_0 \cdot (\vec{r} - \vec{r}') / \hbar} - i\hbar \left[ i\omega_{\alpha\beta} + i(m_\alpha^2 - m_\beta^2) \delta + \gamma_{\alpha\beta} \right] < m_\alpha | \rho_{\alpha\beta}(\vec{r}, \vec{r}') | m_\beta > \\
 + \sum_{\beta'} \left[ v_{\alpha\beta'}^+(\vec{r}, t) < m_\alpha - 1 | \rho_{\beta'\beta}(\vec{r}, \vec{r}') | m_\beta > + v_{\alpha\beta'}^-(\vec{r}, t) < m_\alpha + 1 | \rho_{\beta'\beta}(\vec{r}, \vec{r}') | m_\beta > \right] \\
 - \sum_{\alpha'} \left[ < m_\alpha | \rho_{\alpha\alpha'}(\vec{r}, \vec{r}') | m_\beta + 1 > v_{\alpha'\beta}^+(\vec{r}', t) \right. \\
 \left. + < m_\alpha | \rho_{\alpha\alpha'}(\vec{r}, \vec{r}') | m_\beta - 1 > v_{\alpha'\beta}^-(\vec{r}', t) \right]
 \end{aligned} \tag{A-6}$$

où :

$$\begin{aligned}
 V_{\beta\alpha}^+(\vec{r}, t) &= \langle \beta | \langle \vec{p}_0 + (m_\alpha + 1)\hbar\vec{k} | V | \vec{p}_0 + m_\alpha\hbar\vec{k} \rangle | \alpha \rangle = \\
 &= -(\vec{u}_{\beta\alpha} \cdot \vec{E}_0^{+\star}/2) U_0^{+\star}(\vec{r}) \exp \left[ -i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r} + \varphi^+) \right] \\
 &\quad - (\vec{u}_{\beta\alpha} \cdot \vec{E}_0^-/2) U_0^-(\vec{r}) \exp \left[ i(\omega t + \vec{k} \cdot \vec{r} + \varphi^-) \right]
 \end{aligned} \tag{A-7}$$

et :

$$\begin{aligned}
 V_{\beta\alpha}^-(\vec{r}, t) &= \langle \beta | \langle \vec{p}_0 + (m_\alpha - 1)\hbar\vec{k} | V | \vec{p}_0 + m_\alpha\hbar\vec{k} \rangle | \alpha \rangle = \\
 &= -(\vec{u}_{\beta\alpha} \cdot \vec{E}_0^{+\star}/2) U_0^{+\star}(\vec{r}) \exp \left[ -i(\omega t + \vec{k} \cdot \vec{r} + \varphi^-) \right] \\
 &\quad - (\vec{u}_{\beta\alpha} \cdot \vec{E}_0^+/2) U_0^+(\vec{r}) \exp \left[ i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r} + \varphi^+) \right]
 \end{aligned} \tag{A-8}$$

Pour  $\vec{r} \equiv \vec{r}'$ , l'opérateur  $\vec{\nabla}_{\vec{r}'}$  disparaît et l'on retrouve les équations utilisées dans le texte.

## APPENDICE B

### LE PROGRAMME SHAPE

C'est un programme de résolution numérique des équations de la matrice densité qui sont présentées dans les références [40, 29] et qui tiennent compte de la géométrie gaussienne des faisceaux lumineux et de la courbure des fronts d'ondes, avec ou sans utilisation de zones de champs séparées dans l'espace, et en présence de relaxation.

Pour chaque classe de vitesse  $v_x$  et  $v_z$  (voir la Figure 4.2.2), les éléments de la matrice densité sont calculés, par une méthode prédicteur-correcteur de Hamming, en suivant la trajectoire des molécules au cours de leur traversée du (ou des) faisceau(x), suivant l'axe  $Ox$ . Puis sont effectuées les intégrations sur la vitesse  $v_z$  et sur la vitesse de traversée  $v_x$ .

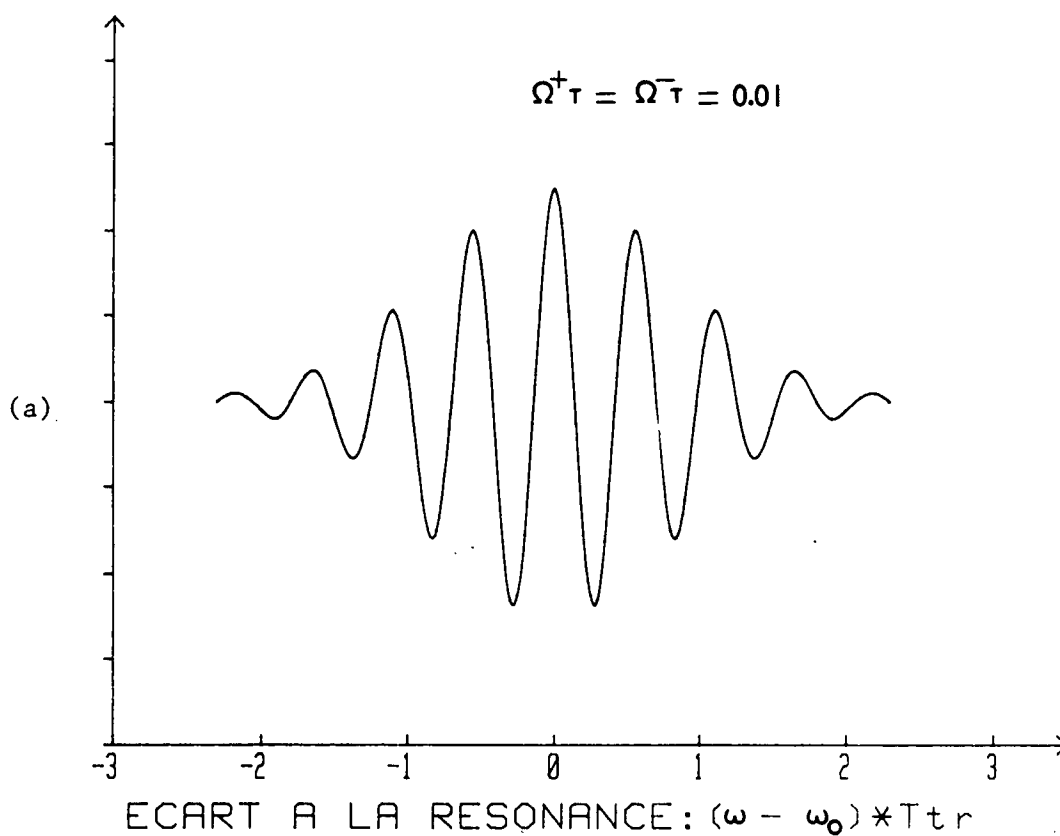
Ce programme a permis de chiffrer quantitativement l'élargissement des raies de saturation, lié au temps de vol des molécules à travers le faisceau, en champ laser fort, et de montrer la variation du déplacement de l'effet Doppler du second ordre avec l'intensité laser [29]. Il a permis également de résoudre numériquement le problème de l'interaction entre un faisceau laser gaussien d'intensité quelconque (avec ou sans courbure des fronts d'ondes) et un jet monocinétique : oscillations de Rabi, passage adiabatique rapide [153, 26, 40].

En franges de Ramsey, nous avons pu montrer que pour un jet monocinétique parallèle, l'amplitude du signal de franges ne diminue pas lorsque l'on augmente la distance entre zones, en l'absence de relaxation radiative ou collisionnelle, à la différence du signal de saturation à une seule zone [29]. Le signal de franges ne dépend que de la largeur du trou creusé dans la distribution des vitesses  $v_z$  par le temps de vol fini à travers une seule zone de champ. (Se reporter à la discussion du paragraphe 4.3.4).

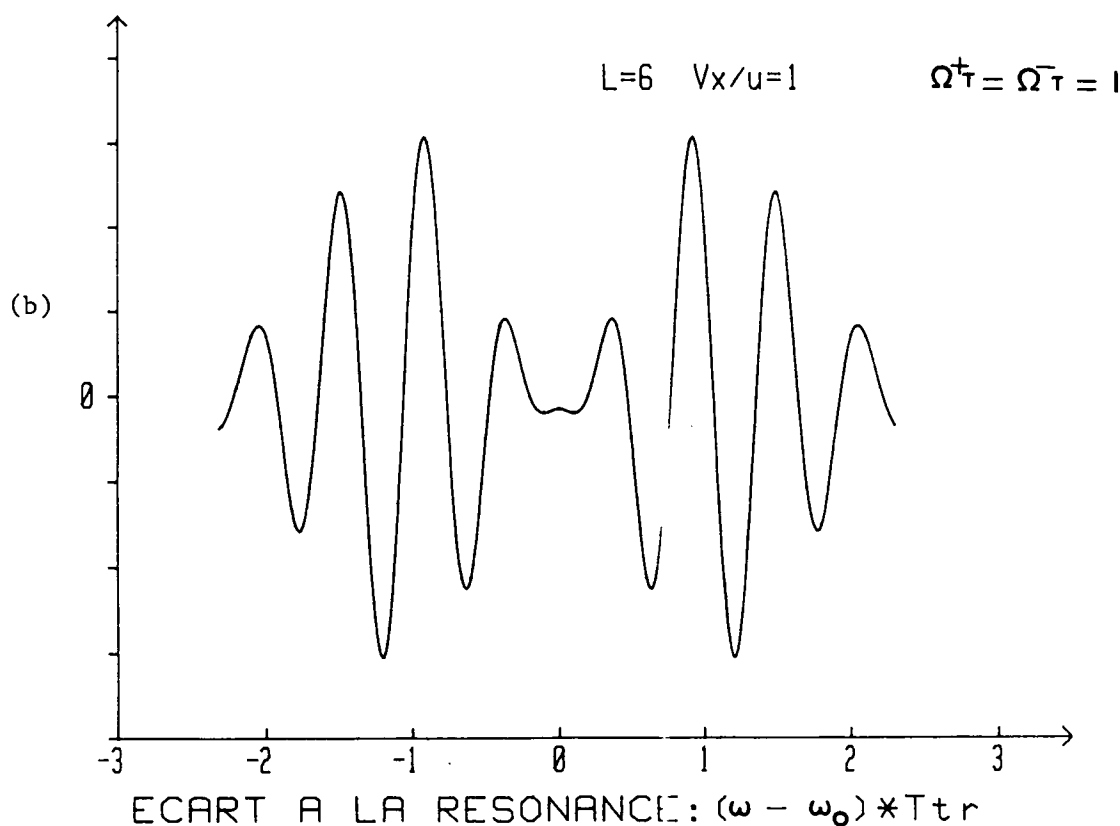
Le programme SHAPE s'est montré également très complémentaire de la théorie en faisceaux gaussiens au quatrième ordre de perturbation [39] et de la théorie en ondes planes présentée au Chapitre 1, tant en ondes progressives qu'en ondes stationnaires. Outre les Figures 1.3.7 (c), 4.2.3 (a) et 4.2.3 (c) du texte, les Figures B.1 et B.2 illustrent quelques résultats qui ont été obtenus avec ce programme. Ainsi le dédoublement de l'enveloppe des franges de Ramsey en champ fort (qui existe déjà dans la théorie en ondes planes à deux zones de champ, Fig. 1.3.5) est également présent en faisceaux gaussiens lorsqu'on utilise quatre zones de champ : Figure B-1.



# FRANGES DE RAMSEY EN CHAMP FAIBLE

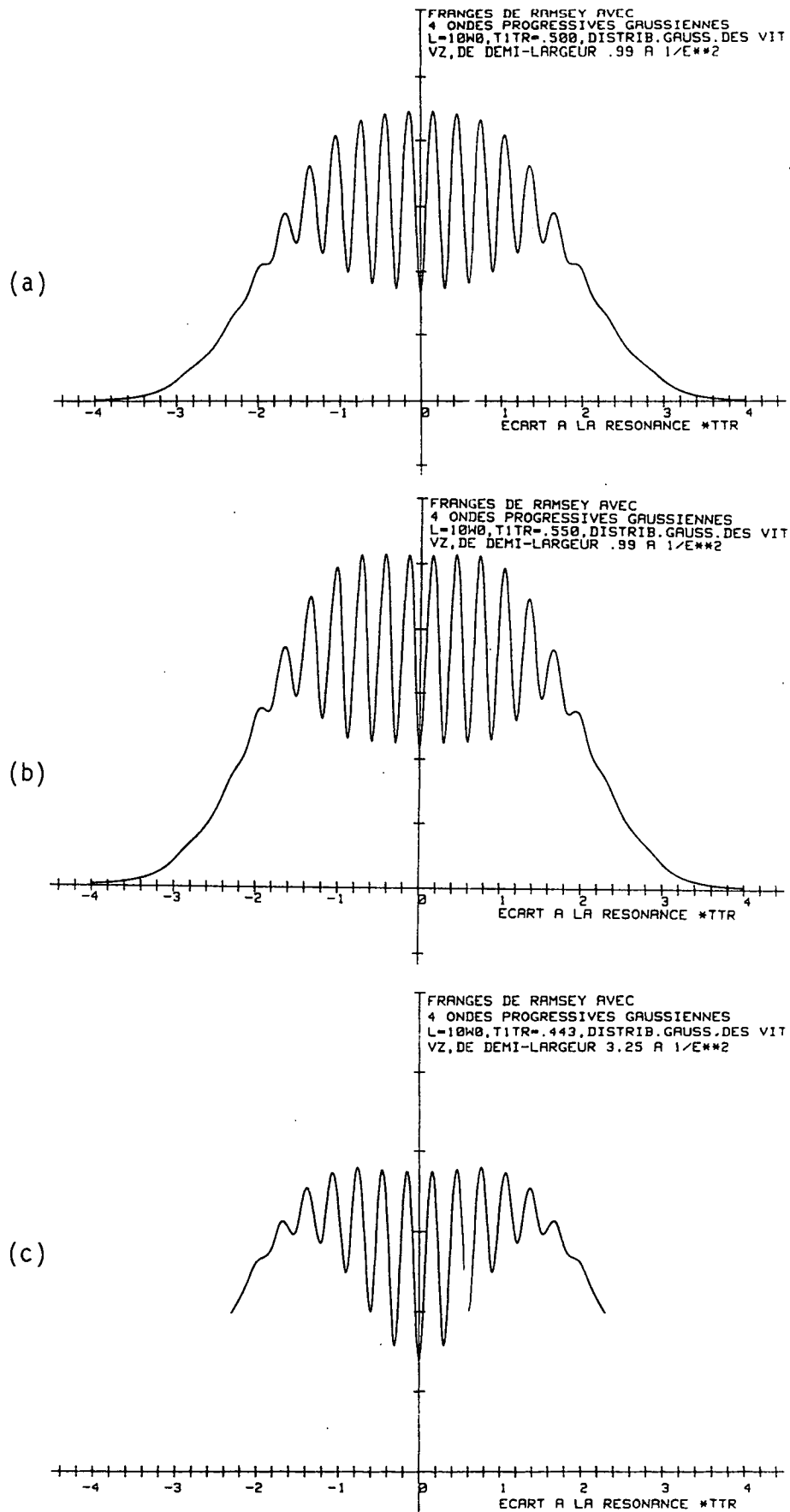


# FRANGES DE RAMSEY EN CHAMP FORT



**FIGURE B.1** - (a) Signal de franges de Ramsey en champ faible  $\Omega^+ w/u = \Omega^- w/u = 0,01$ . La constante de relaxation  $\gamma$  vaut  $0,01 w/u$  et la distance entre zones  $L$  vaut  $6 w$ .  $\tau = w_0/u$  est le temps de vol des molécules à travers le faisceau.

(b) Dédoublément de l'enveloppe des franges de Ramsey en champ fort et en faisceaux gaussiens  $\Omega^+ w/u = \Omega^- w/u = 1$ .  
(b) n'est pas à la même échelle que (a).



**FIGURE B.2** - (a)(b)(c) Franges de Ramsey avec quatre ondes progressives gaussiennes.  
(a) et (b) La largeur Doppler due à la distribution des vitesses  $v_z$  est égale à la largeur due au temps de vol.  
(a) A l'optimum d'intensité pour les franges. ( $\Omega^+ w / u = \Omega^- w / u = 0,5$ .)  
(b) Au-delà de l'optimum. ( $\Omega^+ w / u = \Omega^- w / u = 0,55$ .) Noter l'égalisation de la taille des franges centrales.  
(c) Signal de franges à l'optimum d'intensité lorsque la largeur Doppler due à la distribution des vitesses  $v_z$  est environ trois fois plus large que la largeur due au temps de vol.

## APPENDICE C

### RAPPELS SUR LA CARACTÉRISATION DE LA STABILITÉ

#### DE FRÉQUENCE D'UN OSCILLATEUR

Le signal fourni par un générateur de fréquence peut s'écrire sous la forme :

$$V(t) = [V_0 + \varepsilon(t)] \sin [2\pi\nu_0 t + \varphi(t)]$$

où  $\varepsilon(t)$  et  $\varphi(t)$  sont des fonctions aléatoires centrées représentant respectivement les fluctuations d'amplitude et de phase.

Les fluctuations de fréquences sont alors généralement représentées par une fonction aléatoire centrée,  $y(t)$ , représentant l'écart relatif de fréquence instantanée :

$$y(t) = \frac{1}{2\pi\nu_0} \frac{d\varphi}{dt}$$

La stabilité de fréquence à court terme du générateur (typiquement  $t < 10$  s) peut alors être caractérisée :

- soit dans le domaine des fréquences
- soit dans le domaine des temps.

a) - Domaine des fréquences : densité spectrale de fréquence et de phase

A partir de la fonction aléatoire  $y(t)$  la densité spectrale de fréquence  $S_y(f)$  est définie comme la transformée de Fourier de la fonction d'autocorrélation  $R_y(\tau)$ , soit :

$$\begin{aligned} R_y(\tau) &= \langle y(t + \tau/2) y(t - \tau/2) \rangle \\ &= \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} y(t + \tau/2) y(t - \tau/2) dt \end{aligned}$$

et

$$S_y(f) = \int_{-\infty}^{+\infty} R_y(\tau) e^{-i2\pi f\tau} d\tau$$

Remarquons que d'après la relation

$$y(t) = \frac{1}{2\pi\nu_0} \frac{d\varphi}{dt}$$

nous pourrions aussi définir une densité spectrale de bruit de phase  $S_\varphi(f)$  reliée très simplement à  $S_y(f)$  [178] par la relation

$$S_y(f) = \frac{f^2}{\nu_0^2} S_\varphi(f)$$

et qui, par conséquent, traduit la même information.

### Modèle de densité spectrale

Les résultats expérimentaux permettent de caractériser les types de bruits rencontrés dans les oscillateurs par une loi de puissance :

$$S_y(f) = \sum h_\ell f^\ell \quad (\ell = -2, -1, 0, 1, 2)$$

Ces divers types de bruits ont été rassemblés dans le tableau C.1 .

#### - Pureté spectrale d'un laser

En pratique, ce qui est étudié à l'analyseur de spectre n'est pas  $S_y(f)$  ou  $S_\varphi(f)$ , mais  $S_v(f)$  densité spectrale du signal complet qui représente à la fois les fluctuations de fréquence et d'amplitude. Néanmoins, lorsqu'on néglige les fluctuations d'amplitude et si l'écart quadratique moyen de  $\varphi(t)$  est petit devant un radian [178] :

$$S_v(f) = \frac{\nu_0^2}{2} [\delta(f - \nu_0) + S_\varphi(f - \nu_0)]$$

$\delta$  désignant la fonction de Dirac.

La translation de  $S_v(f)$  à fréquence nulle permet alors d'accéder à la densité spectrale de bruit de phase  $S_\varphi(f)$ .

#### b) - Domaine temps

Comme nous ne pouvons pas accéder à la fréquence instantanée  $\nu(t)$ , la fréquence est estimée sur l'intervalle de temps  $(t_k, t_k + \tau)$ , soit :

$$\langle \nu(t) \rangle_{t_k, \tau} = \nu_0 + \frac{1}{\tau} \int_{t_k}^{t_k + \tau} d\theta \frac{1}{2\pi} \frac{d\varphi(\theta)}{d\theta} = \nu_0 (1 + \bar{y}_k)$$

avec :

$$\bar{y}_k = \frac{1}{v_0 \tau} \int_{t_k}^{t_k + \tau} \left( \frac{1}{2\pi} \frac{d\varphi}{d\theta} \right) d\theta$$

et :

$$t_{k+1} = t_k + T$$

T est l'intervalle entre deux mesures,

$\tau$  est la durée d'une mesure.

La variance à N échantillons est alors définie de la manière suivante :

$$\sigma_y^2(N, T, \tau) = \frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^N \left( \bar{y}_i - \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N \bar{y}_j \right)^2$$

Parmi toutes les variances possibles, la plus communément utilisée pour caractériser la stabilité d'un oscillateur est la variance d'Allan définie par  $N = 2$  et  $T = \tau$ . Soit :

$$\sigma_y^2(\tau) = \langle \sigma_y^2(2, \tau, \tau) \rangle = \frac{1}{2} \langle (\bar{y}_1 - \bar{y}_2)^2 \rangle$$

En fait, l'estimation expérimentale de la variance d'Allan porte sur un nombre fini m de valeurs de  $\sigma_y^2(2, \tau, \tau)$ , soit :

$$\sigma_y^2(\tau) = \frac{1}{m} \sum_{k=1}^m \frac{(\bar{y}_{k+1} - \bar{y}_k)^2}{2}$$

Pour un nombre de mesure m supérieur à dix, l'incertitude sur  $\sigma_y(\tau)$  est donnée par l'expression :

$$\frac{\Delta\sigma}{\sigma} \approx \frac{1}{\sqrt{m}} \quad (m > 10)$$

Contrairement à la variance vraie ( $N = \infty$ ), la variance d'Allan possède l'avantage de converger pour les divers types de bruits généralement rencontrés dans les oscillateurs. L'origine de cette convergence est nettement mise en évidence par les relations entre variance et densité spectrale de bruit (tableau C.1).

TABLEAU C-1

RELATION ENTRE LA DENSITE SPECTRALE ET LA VARIANCE D'ALLAN POUR LES CINQ TYPES DE BRUITS CONVENTIONNELS

Nature du bruit de fréquence	Nature du bruit de phase	n	$S_y(f)$	$S_\phi(f)$	$\sigma_y^2(2, \tau, \tau)$	$\sigma$
Marche aléatoire		-2	$h_{-2} f^{-2}$	$v_0^2 h_{-2} f^{-4}$	$(2\pi)^2 h_{-2} \frac{\tau}{6}$	$\tau^{-1/2}$
Scintillation		-1	$h_{-1} f^{-1}$	$v_0^2 h_{-1} f^{-3}$	$2 \log 2 h_{-1}$	o
Blanc	Marche aléatoire	0	$h_0$	$v_0^2 h_0 f^{-2}$	$\frac{h_0}{2\tau}$	$\tau^{-1/2}$
	Scintillation	1	$h_1 f$	$v_0^2 h_1 f^{-1}$	$\frac{h_1}{(2\pi)^2} \left[ 3(2 + \log 2\pi f_1 \tau) - \log 2 \right] \frac{1}{\tau^2}$	
	Blanc	2	$h_2 f^2$	$v_0^2 h_2$	$h_2 \frac{3f_2}{(2\pi)^2} \frac{1}{\tau^2}$	

c) - Relation entre les domaines temps et fréquences

L'étude théorique des propriétés des asservissements d'oscillateurs permet de calculer la densité spectrale de l'oscillateur asservi. Il est donc important de connaître la relation entre densité spectrale et variance d'Allan.

Le théorème de CUTLER [178] permet de relier  $\sigma_y^2(2, \tau, \tau)$  à la densité spectrale de bruit de fréquence  $S_y(f)$

$$\sigma_y^2(2, \tau, \tau) = \int_0^{\infty} S_y(f) \frac{2 \sin^4 \pi \tau f}{(\pi \tau f)^2} df$$

Pour les divers types de bruit envisagés précédemment, il est possible d'en déduire les variances d'Allan correspondantes. Ces résultats sont rassemblés dans le tableau C-1.

En coordonnées logarithmiques, la pente de la courbe de la variance permet d'identifier le type de bruit dominant au temps  $\tau$  considéré.

## APPENDICE D

### STRUCTURE ZEEMAN DUE AU CHAMP MAGNETIQUE TERRESTRE DES TRANSITIONS P4, R28, Q55, ET R94 DE LA BANDE $\nu_3$ DE $\text{SF}_6$

Nous nous intéressons ici à l'effet Zeeman dû au champ terrestre (effet supposé faible devant les énergies hyperfines) sur les résonances moléculaires observées à très haute résolution dans la grande cuve d'absorption. L'orientation Nord-Sud (axe Oz) de cette cuve, ainsi que la polarisation circulaire du champ laser conduisent à considérer deux cas :

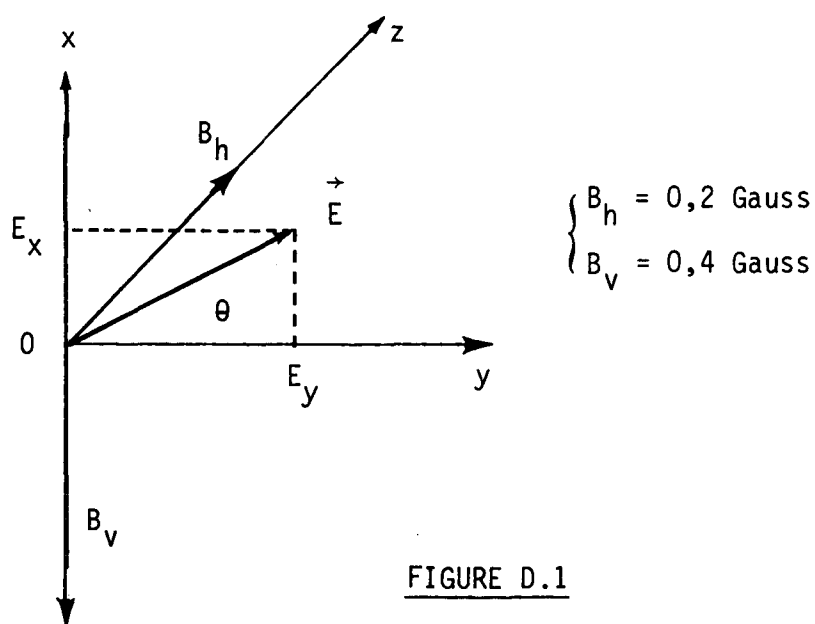


FIGURE D.1

#### • Transitions $\Delta M = 0$

Ces transitions sont dues uniquement à la composante verticale du champ magnétique terrestre ( $H = B_v$ ).

#### • Transitions $\Delta M = \pm 1$

Ces transitions sont dues à la fois à la composante horizontale ( $B_h$ ) et à la composante verticale ( $B_v$ ) du champ terrestre comme le montre la Figure D.1 .



Pour simplifier, les calculs numériques ci-dessous sont effectués avec la valeur supérieure du champ magnétique, soit  $H = 0,4$  Gauss.

Les tableaux qui suivent présentent, pour chacune des transitions P4, R28, Q55, et R94, l'étalement du spectre Zeeman pour toutes les valeurs de  $I$  (0, 1, 2, 3) et de  $F$  ( $\vec{F} = \vec{I} + \vec{J}$ ) observées. Pour une valeur de  $(I, F)$  donnée, sont portées dans chaque tableau les valeurs extrêmes de la projection  $M_F$  de  $F$  sur l'axe de quantification en question. Dans le cas  $\Delta M = 0$  nous n'avons indiqué que les valeurs  $M_F > 0$  le spectre étant symétrique. Seules les transitions  $\Delta M = +1$  ont été calculées, le spectre  $\Delta M = -1$  s'obtenant simplement par symétrie comme l'a montré l'expression (3.17).

Enfin,  $W(F, M_F)$  est la valeur du déplacement Zeeman pour chacune des composantes calculées.

La seconde partie du tableau concerne le calcul du moment de transition de chacune des composantes, expression (3.35) :

$$I_1 = \left| \begin{pmatrix} F_b & 1 & F_a \\ -M_b & q & M_a \end{pmatrix} \right|$$

$$I_2 = \left[ (2F_b + 1)(2F_a + 1) \right]^{1/2} \left| \begin{pmatrix} J_b & 1 & J_a \\ F_a & I & F_b \end{pmatrix} \right|$$

$$I_3 = I_1 \times I_2$$

Le moment de transition se déduit alors simplement :

$$\mu = 0,42 \sqrt{2J_b + 1} \times I_3$$

Ce calcul montre l'énorme dispersion des valeurs du moment de transition à l'intérieur d'une structure hyperfine donnée.

Enfin, pour chacune des valeurs de  $(J, I)$  nous avons illustré le tableau en présentant le plus étendu parmi les différentes valeurs de  $F$ ) des spectres Zeeman dans l'hypothèse d'un champ laser faible, c'est-à-dire pour des intensités Zeeman proportionnelles à la puissance quatre du moment de transition.

TRANSITION: P 4

SPIN = 0

COMPOSANTES F = 4

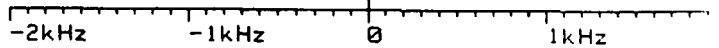
DELTA M = 0

\*\*\*\*\*

TRANSITION : P 4 SPIN I= 0

COMPOSANTES DELTA M = 0

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
4	+0	+0.0 Hz	.2520	1.0000	.2520
4	+1	+0.0 Hz	.2440	1.0000	.2440
4	+2	+0.0 Hz	.2182	1.0000	.2182
4	+3	+0.0 Hz	.1667	1.0000	.1667

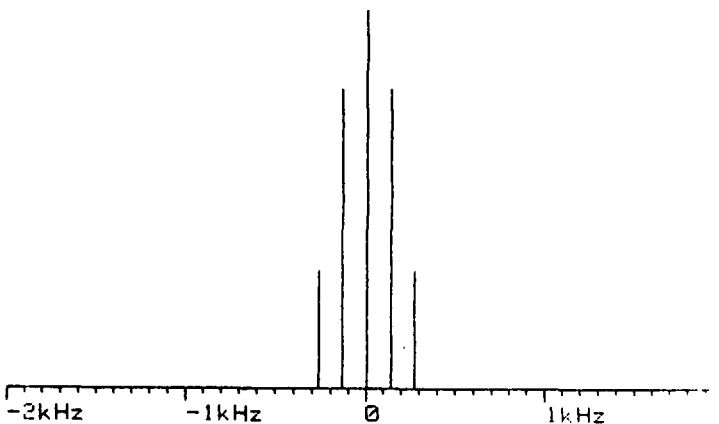


TRANSITION: P 4

SPIN = 1

COMPOSANTES F = 3

DELTA M = 0



\*\*\*\*\*

TRANSITION : P 4 SPIN I= 1

COMPOSANTES DELTA M = 0

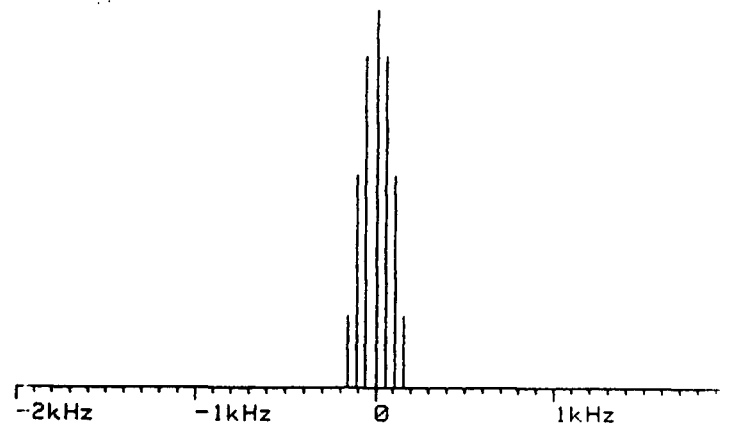
F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
3	+0	+0.0 Hz	.2928	.8452	.2474
3	+1	-132.5 Hz	.2760	.8452	.2333
3	+2	-265.1 Hz	.2182	.8452	.1844
4	+0	+0.0 Hz	.2520	.9682	.2440
4	+1	+53.0 Hz	.2440	.9682	.2362
4	+2	+106.0 Hz	.2182	.9682	.2113
4	+3	+159.0 Hz	.1667	.9682	.1614
5	+0	+0.0 Hz	.2247	1.1055	.2485
5	+1	+79.5 Hz	.2202	1.1055	.2434
5	+2	+159.0 Hz	.2060	1.1055	.2277
5	+3	+238.6 Hz	.1798	1.1055	.1988
5	+4	+318.1 Hz	.1348	1.1055	.1491

TRANSITION: P 4

SPIN = 1

COMPOSANTES F = 4

DELTA M = 0

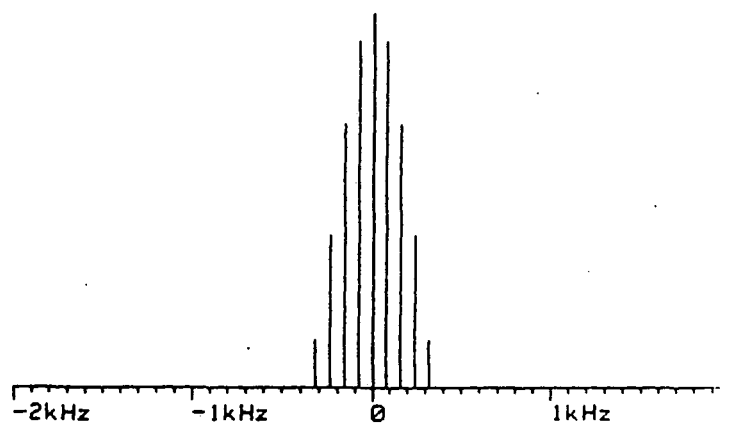


TRANSITION: P 4

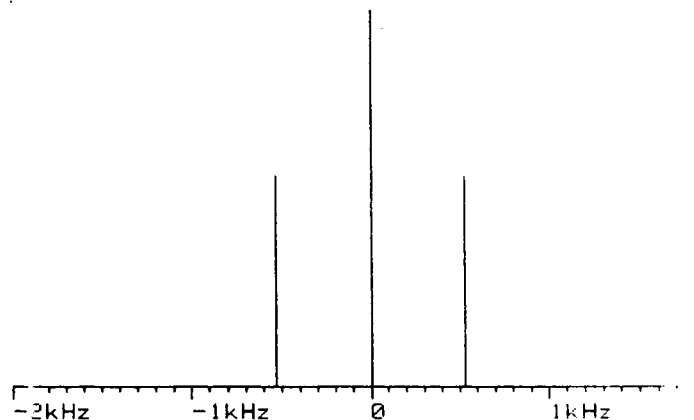
SPIN = 1

COMPOSANTES F = 5

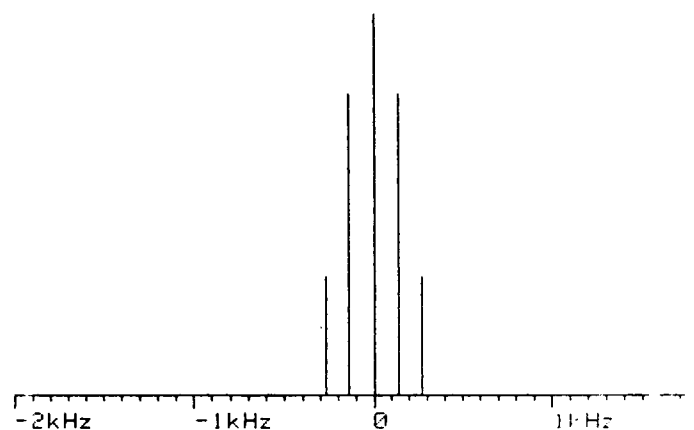
DELTA M = 0



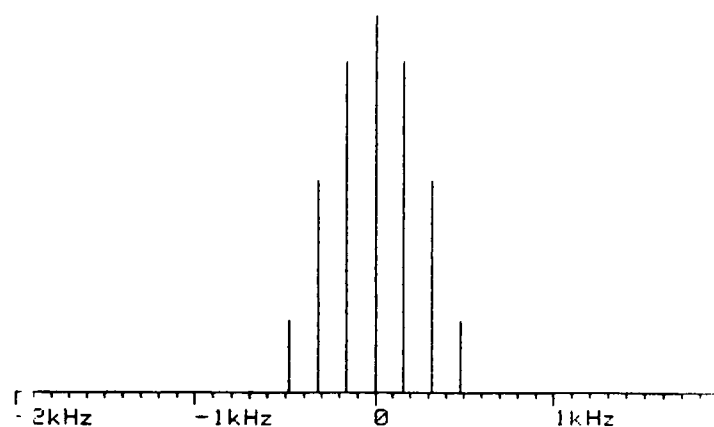
TRANSITION: P 4 SPIN = 2  
COMPOSANTES F = 2 DELTA M = 0



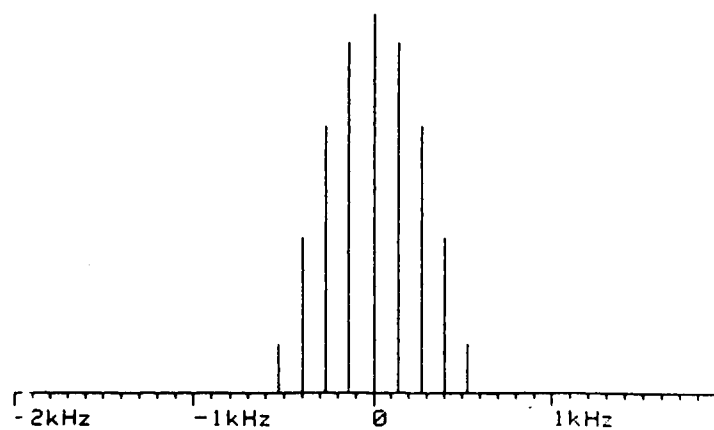
TRANSITION: P 4 SPIN = 2  
COMPOSANTES F = 3 DELTA M = 0



TRANSITION: P 4 SPIN = 2  
COMPOSANTES F = 4 DELTA M = 0



TRANSITION: P 4 SPIN = 2  
COMPOSANTES F = 5 DELTA M = 0

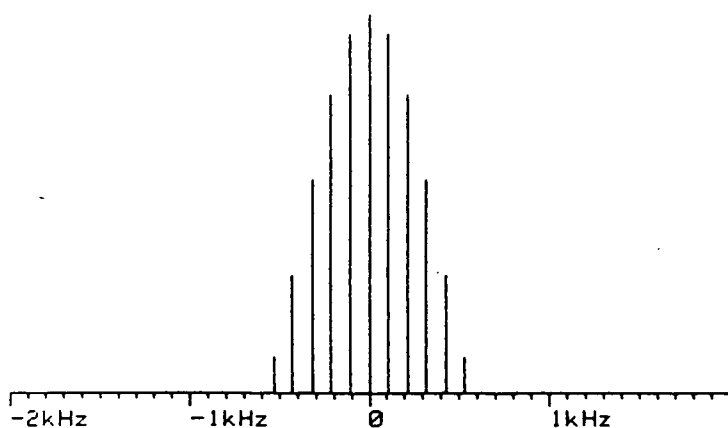


\*\*\*\*\*  
TRANSITION : P 4 SPIN I= 2

COMPOSANTES DELTA M = 0

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
2	+0	+0.0 Hz	.3651	.6547	.2390
2	+1	-530.1 Hz	.3162	.6547	.2070
3	+0	+0.0 Hz	.2928	.7715	.2259
3	+1	+132.5 Hz	.2760	.7715	.2130
3	+2	+265.1 Hz	.2182	.7715	.1684
4	+0	+0.0 Hz	.2520	.9047	.2280
4	+1	+159.0 Hz	.2440	.9047	.2207
4	+2	+318.1 Hz	.2182	.9047	.1974
4	+3	+477.1 Hz	.1667	.9047	.1508
5	+0	+0.0 Hz	.2247	1.0488	.2357
5	+1	+132.5 Hz	.2202	1.0488	.2309
5	+2	+265.1 Hz	.2060	1.0488	.2160
5	+3	+397.6 Hz	.1798	1.0488	.1886
5	+4	+530.1 Hz	.1348	1.0488	.1414
6	+0	+0.0 Hz	.2048	1.2019	.2462
6	+1	+106.0 Hz	.2020	1.2019	.2427
6	+2	+212.1 Hz	.1931	1.2019	.2321
6	+3	+318.1 Hz	.1774	1.2019	.2132
6	+4	+424.1 Hz	.1527	1.2019	.1835
6	+5	+530.1 Hz	.1132	1.2019	.1361

TRANSITION: P 4 SPIN = 2  
COMPOSANTES F = 6 DELTA M = 0

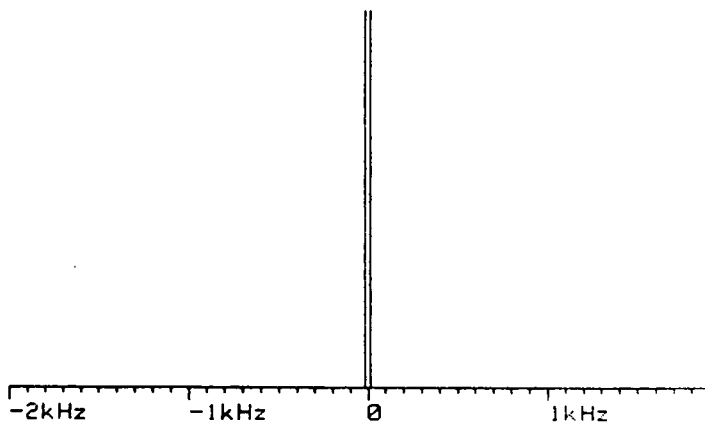


TRANSITION: P 4

SPIN = 0

COMPOSANTES F = 4

|DELTA M| = 1



\*\*\*\*\*

TRANSITION : P 4

SPIN I= 0

COMPOSANTES DELTA M = +1

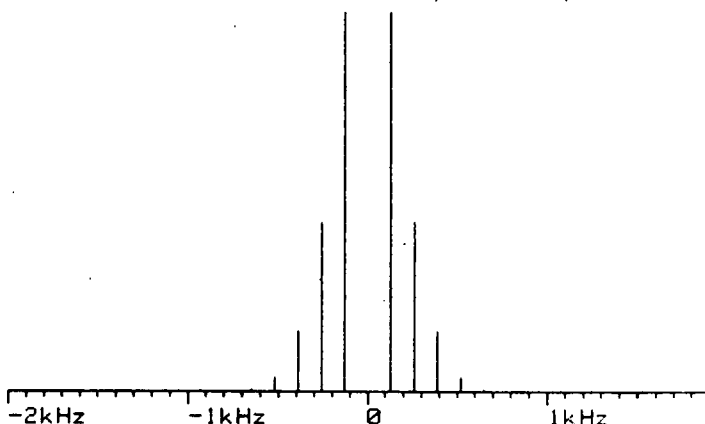
F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
4	-4	+11.3 Hz	.3333	1.0000	.3333
4	+0	+11.3 Hz	.1543	1.0000	.1543
4	+2	+11.3 Hz	.0630	1.0000	.0630

TRANSITION: P 4

SPIN = 1

COMPOSANTES F = 3

|DELTA M| = 1



\*\*\*\*\*

TRANSITION : P 4

SPIN I= 1

COMPOSANTES DELTA M = +1

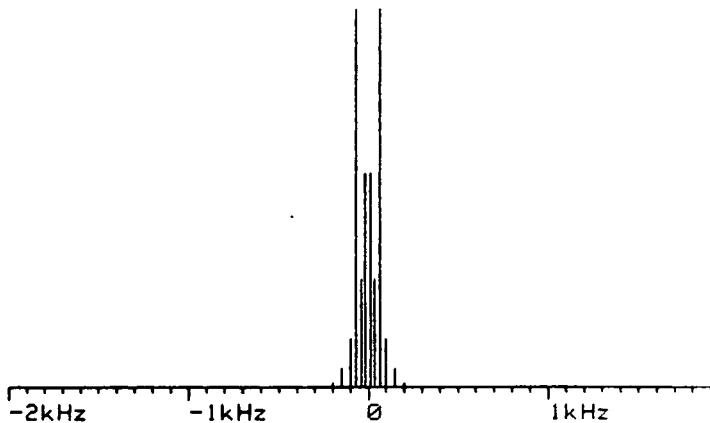
F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
3	-3	-121.3 Hz	.3780	.8452	.3194
3	-2	-253.8 Hz	.3086	.8452	.2608
3	-1	-386.3 Hz	.2390	.8452	.2020
3	+0	-518.9 Hz	.1690	.8452	.1429
3	+1	-651.4 Hz	.0976	.8452	.0825
4	-4	-68.2 Hz	.3333	.9682	.3227
4	-3	-15.2 Hz	.2887	.9682	.2795
4	-2	+37.8 Hz	.2440	.9682	.2362
4	-1	+90.8 Hz	.1992	.9682	.1929
4	+0	+143.8 Hz	.1543	.9682	.1494
4	+1	+196.8 Hz	.1091	.9682	.1056
4	+2	+249.8 Hz	.0630	.9682	.0610
5	-5	+11.3 Hz	.3015	1.1055	.3333
5	-4	+90.8 Hz	.2697	1.1055	.2981
5	-3	+170.3 Hz	.2378	1.1055	.2629
5	-2	+249.8 Hz	.2060	1.1055	.2277
5	-1	+329.4 Hz	.1741	1.1055	.1925
5	+0	+408.9 Hz	.1421	1.1055	.1571
5	+1	+488.4 Hz	.1101	1.1055	.1217
5	+2	+567.9 Hz	.0778	1.1055	.0861
5	+3	+647.5 Hz	.0449	1.1055	.0497

TRANSITION: P 4

SPIN = 1

COMPOSANTES F = 4

|DELTA M| = 1

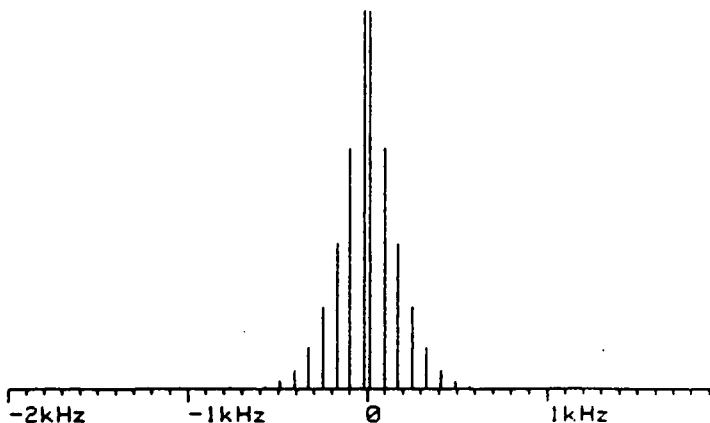


TRANSITION: P 4

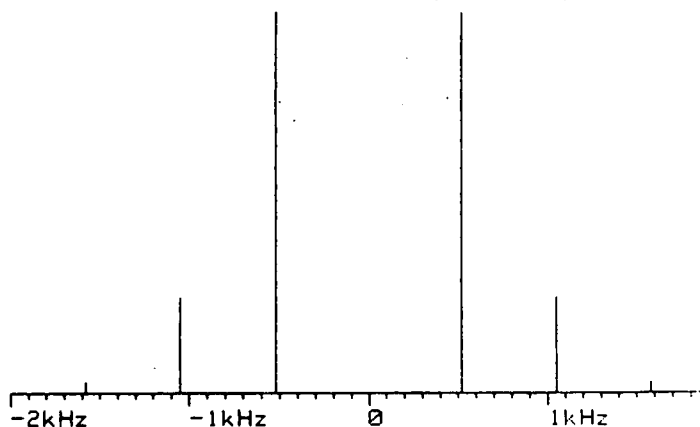
SPIN = 1

COMPOSANTES F = 5

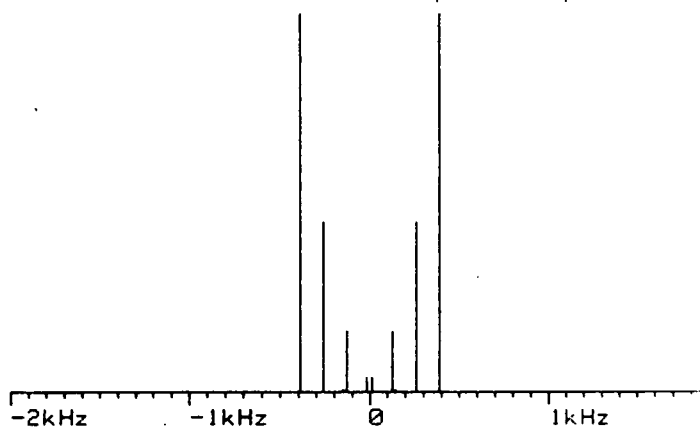
|DELTA M| = 1



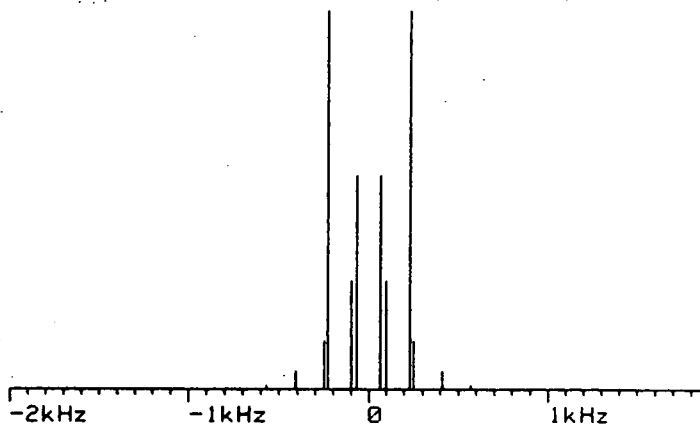
TRANSITION: P 4 SPIN = 2  
COMPOSANTES F = 2 |DELTA M| = 1



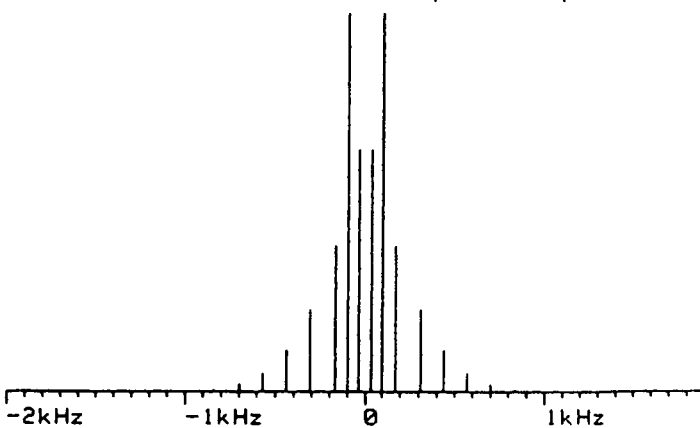
TRANSITION: P 4 SPIN = 2  
COMPOSANTES F = 3 |DELTA M| = 1



TRANSITION: P 4 SPIN = 2  
COMPOSANTES F = 4 |DELTA M| = 1



TRANSITION: P 4 SPIN = 2  
COMPOSANTES F = 5 |DELTA M| = 1

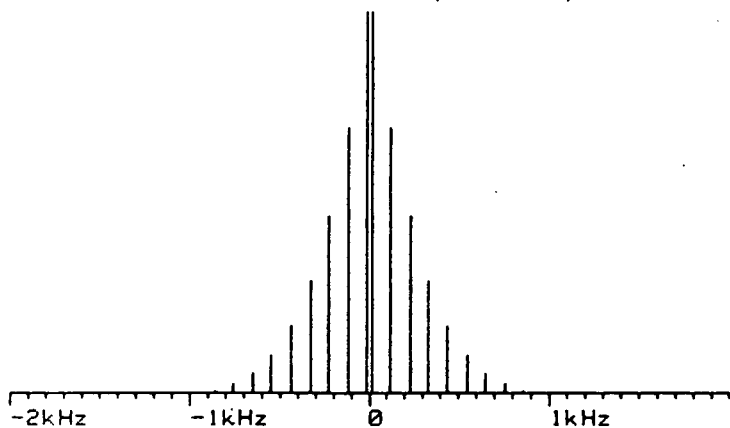


\*\*\*\*\*  
TRANSITION : P 4 SPIN I= 2

COMPOSANTES DELTA M = +1

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
2	-2	-518.9 Hz	.4472	.6547	.2928
2	-1	-1049.0 Hz	.3162	.6547	.2070
2	+0	-1579.2 Hz	.1826	.6547	.1195
3	-3	-386.3 Hz	.3780	.7715	.2916
3	-2	-253.8 Hz	.3086	.7715	.2381
3	-1	-121.3 Hz	.2390	.7715	.1844
3	+0	+11.3 Hz	.1690	.7715	.1304
3	+1	+143.8 Hz	.0976	.7715	.0753
4	-4	-227.3 Hz	.3333	.9047	.3016
4	-3	-68.2 Hz	.2887	.9047	.2612
4	-2	+90.8 Hz	.2440	.9047	.2207
4	-1	+249.8 Hz	.1992	.9047	.1802
4	+0	+408.9 Hz	.1543	.9047	.1396
4	+1	+567.9 Hz	.1091	.9047	.0987
4	+2	+727.0 Hz	.0630	.9047	.0570
5	-5	-94.8 Hz	.3015	1.0488	.3162
5	-4	+37.8 Hz	.2697	1.0488	.2828
5	-3	+170.3 Hz	.2378	1.0488	.2494
5	-2	+302.9 Hz	.2060	1.0488	.2160
5	-1	+435.4 Hz	.1741	1.0488	.1826
5	+0	+567.9 Hz	.1421	1.0488	.1491
5	+1	+700.5 Hz	.1101	1.0488	.1155
5	+2	+833.0 Hz	.0778	1.0488	.0816
5	+3	+965.5 Hz	.0449	1.0488	.0471
6	-6	+11.3 Hz	.2774	1.2019	.3333
6	-5	+117.3 Hz	.2532	1.2019	.3043
6	-4	+223.3 Hz	.2290	1.2019	.2752
6	-3	+329.4 Hz	.2048	1.2019	.2462
6	-2	+435.4 Hz	.1806	1.2019	.2171
6	-1	+541.4 Hz	.1564	1.2019	.1880
6	+0	+647.5 Hz	.1322	1.2019	.1589
6	+1	+753.5 Hz	.1080	1.2019	.1297
6	+2	+859.5 Hz	.0836	1.2019	.1005
6	+3	+965.5 Hz	.0591	1.2019	.0711
6	+4	+1071.6 Hz	.0341	1.2019	.0410

TRANSITION: P 4 SPIN = 2  
COMPOSANTES F = 6 |DELTA M| = 1



\*\*\*\*\*  
TRANSITION : R 28 SPIN I= 0

COMPOSANTES DELTA M = 0

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
28	+0	+0.0 Hz	.0945	1.0000	.0945
28	+1	+0.0 Hz	.0944	1.0000	.0944
28	+28	+0.0 Hz	0.0000	1.0000	0.0000

\*\*\*\*\*  
TRANSITION : R 28 SPIN I= 1

COMPOSANTES DELTA M = 0

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
27	+0	+0.0 Hz	.0962	.9816	.0945
27	+1	+2.0 Hz	.0962	.9816	.0944
27	+27	+52.9 Hz	0.0000	.9816	0.0000
28	+0	+0.0 Hz	.0945	.9994	.0944
28	+1	-.1 Hz	.0944	.9994	.0944
28	+28	-3.7 Hz	0.0000	.9994	0.0000
29	+0	+0.0 Hz	.0929	1.0174	.0945
29	+1	-1.8 Hz	.0928	1.0174	.0944
29	+29	-53.0 Hz	0.0000	1.0174	0.0000

\*\*\*\*\*  
TRANSITION : R 28 SPIN I= 2

COMPOSANTES DELTA M = 0

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
26	+0	+0.0 Hz	.0981	.9630	.0944
26	+1	+4.2 Hz	.0980	.9630	.0944
26	+26	+109.4 Hz	0.0000	.9630	0.0000
27	+0	+0.0 Hz	.0962	.9804	.0944
27	+1	+1.7 Hz	.0962	.9804	.0943
27	+27	+45.0 Hz	0.0000	.9804	0.0000
28	+0	+0.0 Hz	.0945	.9981	.0943
28	+1	-.4 Hz	.0944	.9981	.0943
28	+28	-11.0 Hz	0.0000	.9981	0.0000
29	+0	+0.0 Hz	.0929	1.0161	.0944
29	+1	-2.1 Hz	.0928	1.0161	.0943
29	+29	-59.9 Hz	0.0000	1.0161	0.0000
30	+0	+0.0 Hz	.0913	1.0345	.0944
30	+1	-3.4 Hz	.0912	1.0345	.0944
30	+30	-102.6 Hz	0.0000	1.0345	0.0000

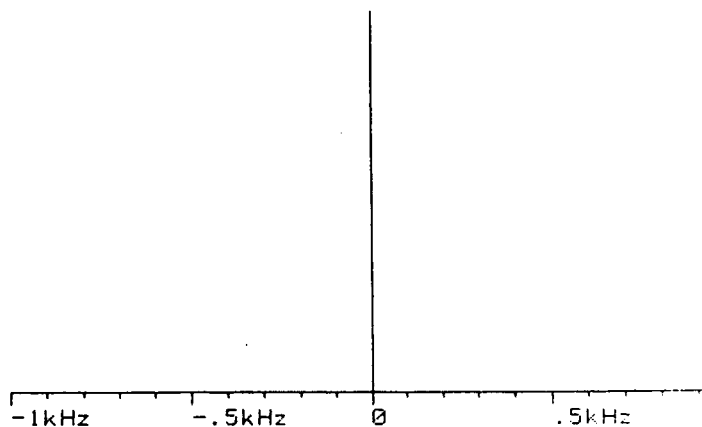
\*\*\*\*\*  
TRANSITION : R 28 SPIN I= 3

COMPOSANTES DELTA M = 0

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
25	+0	+0.0 Hz	.1000	.9439	.0944
25	+1	+6.8 Hz	.0999	.9439	.0943
25	+25	+169.9 Hz	0.0000	.9439	0.0000
26	+0	+0.0 Hz	.0981	.9610	.0942
26	+1	+3.7 Hz	.0980	.9610	.0942
26	+26	+96.8 Hz	0.0000	.9610	0.0000
27	+0	+0.0 Hz	.0962	.9784	.0942
27	+1	+1.2 Hz	.0962	.9784	.0941
27	+27	+33.3 Hz	0.0000	.9784	0.0000
28	+0	+0.0 Hz	.0945	.9962	.0941
28	+1	-.8 Hz	.0944	.9962	.0941
28	+28	-21.9 Hz	0.0000	.9962	0.0000
29	+0	+0.0 Hz	.0929	1.0143	.0942
29	+1	-2.4 Hz	.0928	1.0143	.0941
29	+29	-70.1 Hz	0.0000	1.0143	0.0000
30	+0	+0.0 Hz	.0913	1.0326	.0943
30	+1	-3.7 Hz	.0912	1.0326	.0942
30	+30	-112.2 Hz	0.0000	1.0326	0.0000
31	+0	+0.0 Hz	.0898	1.0513	.0944
31	+1	-4.8 Hz	.0898	1.0513	.0944
31	+31	-149.1 Hz	0.0000	1.0513	0.0000

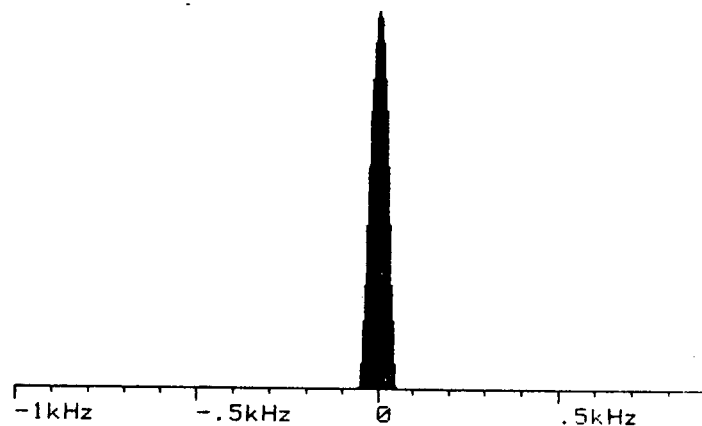
TRANSITION: R 28  
COMPOSANTES F = 28

SPIN = 0  
DELTA M = 0



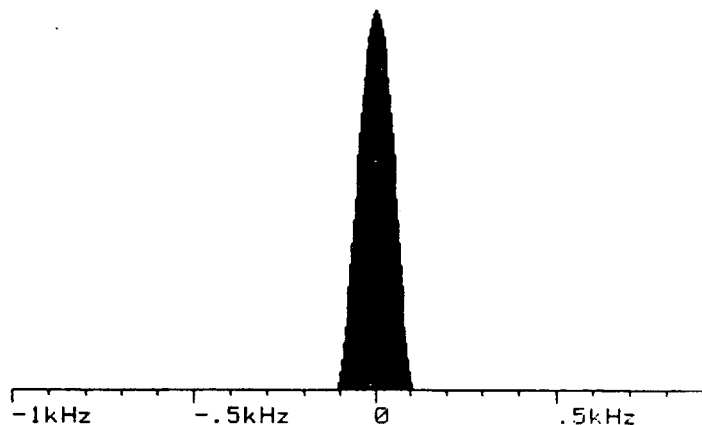
TRANSITION: R 28  
COMPOSANTES F = 29

SPIN = 1  
DELTA M = 0



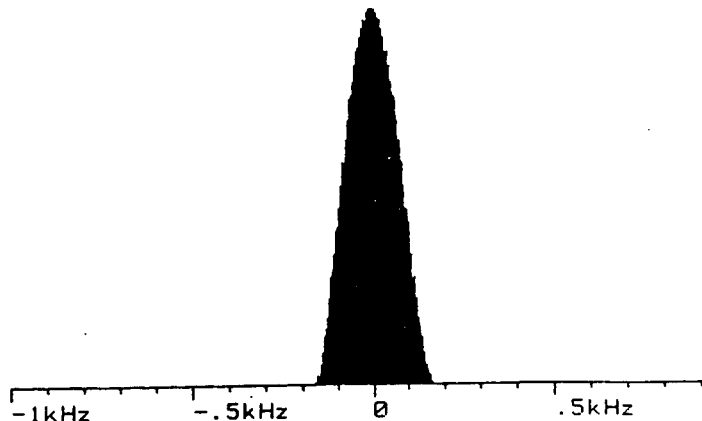
TRANSITION: R 28  
COMPOSANTES F = 26

SPIN = 2  
DELTA M = 0



TRANSITION: R 28  
COMPOSANTES F = 25

SPIN = 3  
DELTA M = 0



TRANSITION: R 28

SPIN = 0

COMPOSANTES F = 28

|DELTA I1| = 1

\*\*\*\*\*

TRANSITION : R 28 SPIN I= 0

COMPOSANTES DELTA M = +1

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
28	-28	+11.3 Hz	.0032	1.0000	.0032
28	+0	+11.3 Hz	.0668	1.0000	.0668
28	+28	+11.3 Hz	.1302	1.0000	.1302

\*\*\*\*\*

TRANSITION : R 28 SPIN I= 1

COMPOSANTES DELTA M = +1

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
27	-27	-96.4 Hz	.0034	.9816	.0033
27	+0	-43.6 Hz	.0680	.9816	.0668
27	+27	+9.3 Hz	.1325	.9816	.1300
28	-28	+16.8 Hz	.0032	.9994	.0032
28	+0	+13.1 Hz	.0668	.9994	.0667
28	+28	+9.4 Hz	.1302	.9994	.1301
29	-29	+117.3 Hz	.0030	1.0174	.0031
29	+0	+64.3 Hz	.0656	1.0174	.0668
29	+29	+11.3 Hz	.1280	1.0174	.1303

\*\*\*\*\*

TRANSITION : R 28 SPIN I= 2

COMPOSANTES DELTA M = +1

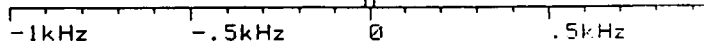
F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
26	-26	-211.7 Hz	.0036	.9630	.0034
26	+0	-102.3 Hz	.0693	.9630	.0667
26	+26	+7.1 Hz	.1348	.9630	.1298
27	-27	-84.7 Hz	.0034	.9804	.0033
27	+0	-39.6 Hz	.0680	.9804	.0667
27	+27	+5.4 Hz	.1325	.9804	.1299
28	-28	+27.7 Hz	.0032	.9981	.0032
28	+0	+16.8 Hz	.0668	.9981	.0667
28	+28	+5.8 Hz	.1302	.9981	.1299
29	-29	+127.6 Hz	.0030	1.0161	.0031
29	+0	+67.7 Hz	.0656	1.0161	.0667
29	+29	+7.9 Hz	.1280	1.0161	.1301
30	-30	+216.5 Hz	.0029	1.0345	.0030
30	+0	+113.9 Hz	.0645	1.0345	.0668
30	+30	+11.3 Hz	.1260	1.0345	.1303

\*\*\*\*\*

TRANSITION : R 28 SPIN I= 3

COMPOSANTES DELTA M = +1

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
25	-25	-335.4 Hz	.0038	.9439	.0036
25	+0	-165.4 Hz	.0707	.9439	.0667
25	+25	+4.5 Hz	.1374	.9439	.1297
26	-26	-192.8 Hz	.0036	.9610	.0034
26	+0	-96.0 Hz	.0693	.9610	.0666
26	+26	+8 Hz	.1348	.9610	.1296
27	-27	-67.1 Hz	.0034	.9784	.0033
27	+0	-33.8 Hz	.0680	.9784	.0665
27	+27	-.5 Hz	.1325	.9784	.1296
28	-28	+44.2 Hz	.0032	.9962	.0032
28	+0	+22.2 Hz	.0668	.9962	.0665
28	+28	+3 Hz	.1302	.9962	.1297
29	-29	+143.0 Hz	.0030	1.0143	.0031
29	+0	+72.8 Hz	.0656	1.0143	.0666
29	+29	+2.7 Hz	.1280	1.0143	.1299
30	-30	+230.9 Hz	.0029	1.0326	.0030
30	+0	+118.7 Hz	.0645	1.0326	.0666
30	+30	+6.5 Hz	.1260	1.0326	.1301
31	-31	+309.5 Hz	.0028	1.0513	.0029
31	+0	+160.4 Hz	.0635	1.0513	.0667
31	+31	+11.3 Hz	.1240	1.0513	.1304

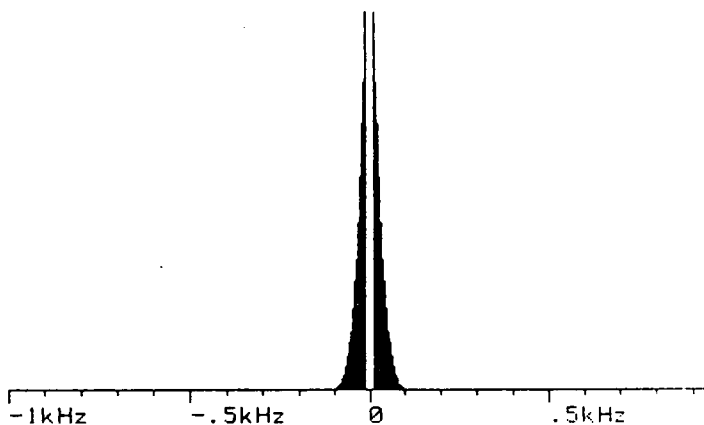


TRANSITION: R 28

SPIN = 1

COMPOSANTES F = 29

|DELTA M| = 1

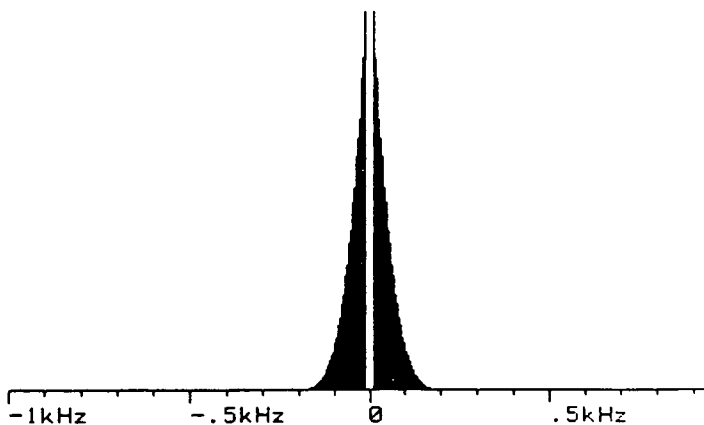


TRANSITION: R 28

SPIN = 2

COMPOSANTES F = 30

|DELTA M| = 1

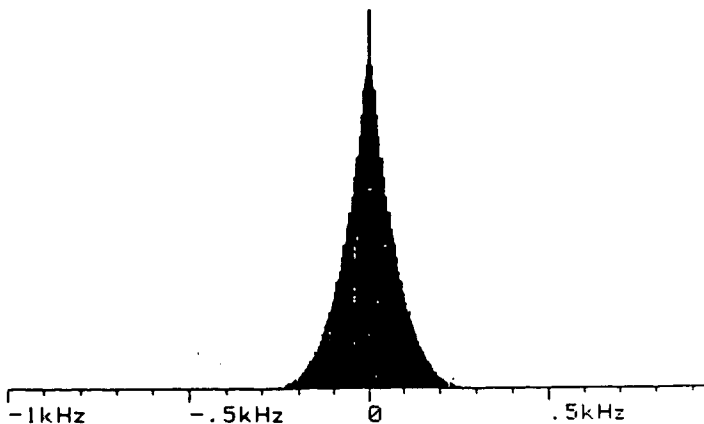


TRANSITION: R 28

SPIN = 3

COMPOSANTES F = 25

|DELTA M| = 1





TRANSITION: Q 55

SPIN = 0

COMPOSANTES F = 55

DELTA M = 0

\*\*\*\*\*  
TRANSITION : Q 55 SPIN I= 0

COMPOSANTES DELTA M = 0

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
55	+0	+0.0 Hz	0.0000	1.0000	0.0000
55	+1	+0.0 Hz	.0017	1.0000	.0017
55	+55	+0.0 Hz	.0941	1.0000	.0941

\*\*\*\*\*  
TRANSITION : Q 55 SPIN I= 1

COMPOSANTES DELTA M = 0

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
54	+0	+0.0 Hz	0.0000	.9908	0.0000
54	+1	+0.0 Hz	.0018	.9908	.0017
54	+54	+0.0 Hz	.0949	.9908	.0940
55	+0	+0.0 Hz	0.0000	.9998	0.0000
55	+1	+0.0 Hz	.0017	.9998	.0017
55	+55	+0.0 Hz	.0941	.9998	.0940
56	+0	+0.0 Hz	0.0000	1.0090	0.0000
56	+1	+0.0 Hz	.0017	1.0090	.0017
56	+56	+0.0 Hz	.0932	1.0090	.0941

\*\*\*\*\*  
TRANSITION : Q 55 SPIN I= 2

COMPOSANTES DELTA M = 0

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
53	+0	+0.0 Hz	0.0000	.9815	0.0000
53	+1	+0.0 Hz	.0018	.9815	.0018
53	+53	+0.0 Hz	.0958	.9815	.0940
54	+0	+0.0 Hz	0.0000	.9904	0.0000
54	+1	+0.0 Hz	.0018	.9904	.0017
54	+54	+0.0 Hz	.0949	.9904	.0940
55	+0	+0.0 Hz	0.0000	.9995	0.0000
55	+1	+0.0 Hz	.0017	.9995	.0017
55	+55	+0.0 Hz	.0941	.9995	.0940
56	+0	+0.0 Hz	0.0000	1.0086	0.0000
56	+1	+0.0 Hz	.0017	1.0086	.0017
56	+56	+0.0 Hz	.0932	1.0086	.0940
57	+0	+0.0 Hz	0.0000	1.0179	0.0000
57	+1	+0.0 Hz	.0016	1.0179	.0017
57	+57	+0.0 Hz	.0924	1.0179	.0941

\*\*\*\*\*  
TRANSITION : Q 55 SPIN I= 3

COMPOSANTES DELTA M = 0

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
52	+0	+0.0 Hz	0.0000	.9721	0.0000
52	+1	+0.0 Hz	.0019	.9721	.0018
52	+52	+0.0 Hz	.0967	.9721	.0940
53	+0	+0.0 Hz	0.0000	.9810	0.0000
53	+1	+0.0 Hz	.0018	.9810	.0018
53	+53	+0.0 Hz	.0958	.9810	.0940
54	+0	+0.0 Hz	0.0000	.9899	0.0000
54	+1	+0.0 Hz	.0018	.9899	.0017
54	+54	+0.0 Hz	.0949	.9899	.0940
55	+0	+0.0 Hz	0.0000	.9990	0.0000
55	+1	+0.0 Hz	.0017	.9990	.0017
55	+55	+0.0 Hz	.0941	.9990	.0940
56	+0	+0.0 Hz	0.0000	1.0081	0.0000
56	+1	+0.0 Hz	.0017	1.0081	.0017
56	+56	+0.0 Hz	.0932	1.0081	.0940
57	+0	+0.0 Hz	0.0000	1.0174	0.0000
57	+1	+0.0 Hz	.0016	1.0174	.0016
57	+57	+0.0 Hz	.0924	1.0174	.0940
58	+0	+0.0 Hz	0.0000	1.0267	0.0000
58	+1	+0.0 Hz	.0016	1.0267	.0016
58	+58	+0.0 Hz	.0917	1.0267	.0941

-1kHz - .5kHz 0 .5kHz

TRANSITION: Q 55

SPIN = 1

COMPOSANTES F = 54

DELTA M = 0

-1kHz - .5kHz 0 .5kHz

TRANSITION: Q 55

SPIN = 2

COMPOSANTES F = 53

DELTA M = 0

-1kHz - .5kHz 0 .5kHz

TRANSITION: Q 55

SPIN = 3

COMPOSANTES F = 52

DELTA M = 0

-1kHz - .5kHz 0 .5kHz

TRANSITION: Q 55

SPIN = 0

COMPOSANTES F = 55

|DELTA M| = 1

\*\*\*\*\*  
TRANSITION : Q 55 SPIN I= 0

COMPOSANTES DELTA M = +1

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
55	-55	+11.3 Hz	.0127	1.0000	.0127
55	+0	+11.3 Hz	.0671	1.0000	.0671
55	+54	+11.3 Hz	.0127	1.0000	.0127

\*\*\*\*\*  
TRANSITION : Q 55 SPIN I= 1

COMPOSANTES DELTA M = +1

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
54	-54	-17.6 Hz	.0129	.9908	.0128
54	+0	-17.6 Hz	.0677	.9908	.0671
54	+53	-17.6 Hz	.0129	.9908	.0128

55	-55	+11.8 Hz	.0127	.9998	.0127
55	+0	+11.8 Hz	.0671	.9998	.0671
55	+54	+11.8 Hz	.0127	.9998	.0127

56	-56	+39.7 Hz	.0125	1.0090	.0126
56	+0	+39.7 Hz	.0665	1.0090	.0671
56	+55	+39.7 Hz	.0125	1.0090	.0126

\*\*\*\*\*  
TRANSITION : Q 55 SPIN I= 2

COMPOSANTES DELTA M = +1

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
53	-53	-47.6 Hz	.0132	.9815	.0129
53	+0	-47.6 Hz	.0684	.9815	.0671
53	+52	-47.6 Hz	.0132	.9815	.0129

54	-54	-16.6 Hz	.0129	.9904	.0128
54	+0	-16.6 Hz	.0677	.9904	.0671
54	+53	-16.6 Hz	.0129	.9904	.0128

55	-55	+12.8 Hz	.0127	.9995	.0127
55	+0	+12.8 Hz	.0671	.9995	.0671
55	+54	+12.8 Hz	.0127	.9995	.0127

56	-56	+40.7 Hz	.0125	1.0086	.0126
56	+0	+40.7 Hz	.0665	1.0086	.0671
56	+55	+40.7 Hz	.0125	1.0086	.0126

57	-57	+67.1 Hz	.0122	1.0179	.0125
57	+0	+67.1 Hz	.0659	1.0179	.0671
57	+56	+67.1 Hz	.0122	1.0179	.0125

\*\*\*\*\*  
TRANSITION : Q 55 SPIN I= 3

COMPOSANTES DELTA M = +1

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
52	-52	-78.7 Hz	.0134	.9721	.0130
52	+0	-78.7 Hz	.0690	.9721	.0671
52	+51	-78.7 Hz	.0134	.9721	.0130

53	-53	-46.0 Hz	.0132	.9810	.0129
53	+0	-46.0 Hz	.0684	.9810	.0671
53	+52	-46.0 Hz	.0132	.9810	.0129

54	-54	-15.0 Hz	.0129	.9899	.0128
54	+0	-15.0 Hz	.0677	.9899	.0670
54	+53	-15.0 Hz	.0129	.9899	.0128

55	-55	+14.4 Hz	.0127	.9990	.0127
55	+0	+14.4 Hz	.0671	.9990	.0670
55	+54	+14.4 Hz	.0127	.9990	.0127

56	-56	+42.2 Hz	.0125	1.0081	.0126
56	+0	+42.2 Hz	.0665	1.0081	.0671
56	+55	+42.2 Hz	.0125	1.0081	.0126

57	-57	+68.5 Hz	.0122	1.0174	.0125
57	+0	+68.5 Hz	.0659	1.0174	.0671
57	+56	+68.5 Hz	.0122	1.0174	.0125

58	-58	+93.5 Hz	.0120	1.0267	.0124
58	+0	+93.5 Hz	.0654	1.0267	.0671
58	+57	+93.5 Hz	.0120	1.0267	.0124

-1kHz - .5kHz 0 .5kHz

TRANSITION: Q 55

SPIN = 1

COMPOSANTES F = 56

|DELTA M| = 1

-1kHz - .5kHz 0 .5kHz

TRANSITION: Q 55

SPIN = 2

COMPOSANTES F = 57

|DELTA M| = 1

-1kHz - .5kHz 0 .5kHz

TRANSITION: Q 55

SPIN = 3

COMPOSANTES F = 58

|DELTA M| = 1

-1kHz - .5kHz 0 .5kHz

TRANSITION: R 94

SPIN = 0

COMPOSANTES F = 94

DELTA M = 0

\*\*\*\*\*  
TRANSITION : R 94 SPIN I= 0

COMPOSANTES DELTA M = 0

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
94	+0	+0.0 Hz	.0516	1.0000	.0516
94	+1	+0.0 Hz	.0516	1.0000	.0516
94	+94	+0.0 Hz	0.0000	1.0000	0.0000

\*\*\*\*\*  
TRANSITION : R 94 SPIN I= 1

COMPOSANTES DELTA M = 0

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
93	+0	+0.0 Hz	.0518	.9946	.0516
93	+1	+.2 Hz	.0518	.9946	.0516
93	+93	+16.6 Hz	0.0000	.9946	0.0000
94	+0	+0.0 Hz	.0516	.9999	.0516
94	+1	-0.0 Hz	.0516	.9999	.0516
94	+94	-.3 Hz	0.0000	.9999	0.0000
95	+0	+0.0 Hz	.0513	1.0053	.0516
95	+1	-.2 Hz	.0513	1.0053	.0516
95	+95	-16.6 Hz	0.0000	1.0053	0.0000

\*\*\*\*\*  
TRANSITION : R 94 SPIN I= 2

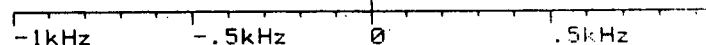
COMPOSANTES DELTA M = 0

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
92	+0	+0.0 Hz	.0521	.9892	.0516
92	+1	+.4 Hz	.0521	.9892	.0516
92	+92	+33.5 Hz	0.0000	.9892	0.0000
93	+0	+0.0 Hz	.0518	.9945	.0516
93	+1	+.2 Hz	.0518	.9945	.0516
93	+93	+15.9 Hz	0.0000	.9945	0.0000
94	+0	+0.0 Hz	.0516	.9998	.0516
94	+1	-0.0 Hz	.0516	.9998	.0516
94	+94	-1.0 Hz	0.0000	.9998	0.0000
95	+0	+0.0 Hz	.0513	1.0052	.0516
95	+1	-.2 Hz	.0513	1.0052	.0516
95	+95	-17.3 Hz	0.0000	1.0052	0.0000
96	+0	+0.0 Hz	.0510	1.0105	.0516
96	+1	-.3 Hz	.0510	1.0105	.0516
96	+96	-32.8 Hz	0.0000	1.0105	0.0000

\*\*\*\*\*  
TRANSITION : R 94 SPIN I= 3

COMPOSANTES DELTA M = 0

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
91	+0	+0.0 Hz	.0524	.9838	.0516
91	+1	+.6 Hz	.0524	.9838	.0516
91	+91	+50.7 Hz	0.0000	.9838	0.0000
92	+0	+0.0 Hz	.0521	.9891	.0516
92	+1	+.4 Hz	.0521	.9891	.0516
92	+92	+32.4 Hz	0.0000	.9891	0.0000
93	+0	+0.0 Hz	.0518	.9944	.0516
93	+1	+.2 Hz	.0518	.9944	.0516
93	+93	+14.8 Hz	0.0000	.9944	0.0000
94	+0	+0.0 Hz	.0516	.9997	.0516
94	+1	-0.0 Hz	.0516	.9997	.0516
94	+94	-2.1 Hz	0.0000	.9997	0.0000
95	+0	+0.0 Hz	.0513	1.0050	.0516
95	+1	-.2 Hz	.0513	1.0050	.0516
95	+95	-18.3 Hz	0.0000	1.0050	0.0000
96	+0	+0.0 Hz	.0510	1.0104	.0516
96	+1	-.4 Hz	.0510	1.0104	.0516
96	+96	-33.8 Hz	0.0000	1.0104	0.0000
97	+0	+0.0 Hz	.0508	1.0157	.0516
97	+1	-.5 Hz	.0508	1.0157	.0516
97	+97	-48.7 Hz	0.0000	1.0157	0.0000

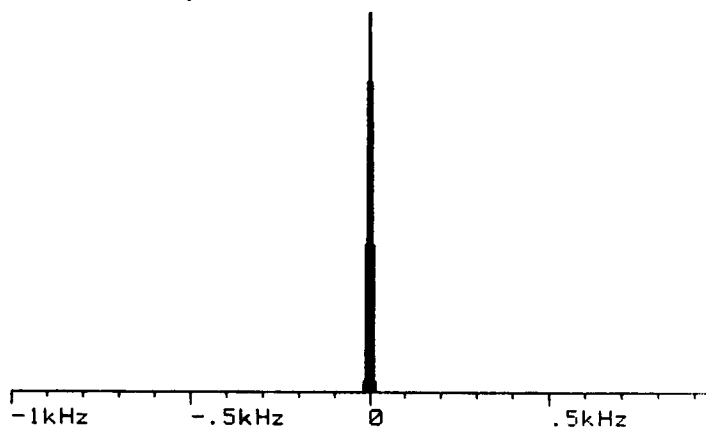


TRANSITION: R 94

SPIN = 1

COMPOSANTES F = 93

DELTA M = 0

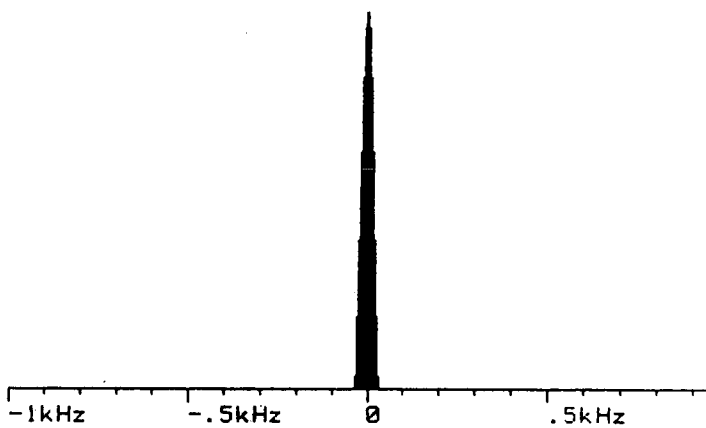


TRANSITION: R 94

SPIN = 2

COMPOSANTES F = 92

DELTA M = 0

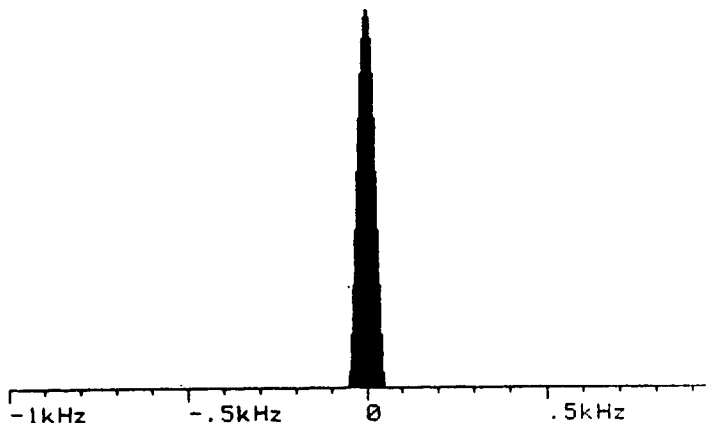


TRANSITION: R 94

SPIN = 3

COMPOSANTES F = 91

DELTA M = 0



\*\*\*\*\*

TRANSITION : R 94 SPIN I= 0

COMPOSANTES DELTA M = +1

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
94	-94	+11.3 Hz	.0005	1.0000	.0005
94	+0	+11.3 Hz	.0365	1.0000	.0365
94	+94	+11.3 Hz	.0724	1.0000	.0724

\*\*\*\*\*

TRANSITION : R 94 SPIN I= 1

COMPOSANTES DELTA M = +1

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
93	-93	-22.0 Hz	.0005	.9946	.0005
93	+0	-5.5 Hz	.0367	.9946	.0365
93	+93	+11.1 Hz	.0727	.9946	.0723
94	-94	+11.8 Hz	.0005	.9999	.0005
94	+0	+11.5 Hz	.0365	.9999	.0365
94	+94	+11.1 Hz	.0724	.9999	.0724
95	-95	+44.4 Hz	.0005	1.0053	.0005
95	+0	+27.8 Hz	.0363	1.0053	.0365
95	+95	+11.3 Hz	.0720	1.0053	.0724

\*\*\*\*\*

TRANSITION : R 94 SPIN I= 2

COMPOSANTES DELTA M = +1

F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
92	-92	-56.0 Hz	.0006	.9892	.0006
92	+0	-22.6 Hz	.0369	.9892	.0365
92	+92	+10.9 Hz	.0731	.9892	.0723
93	-93	-21.0 Hz	.0005	.9945	.0005
93	+0	-5.1 Hz	.0367	.9945	.0365
93	+93	+10.7 Hz	.0727	.9945	.0723
94	-94	+12.8 Hz	.0005	.9998	.0005
94	+0	+11.8 Hz	.0365	.9998	.0365
94	+94	+10.8 Hz	.0724	.9998	.0723
95	-95	+45.4 Hz	.0005	1.0052	.0005
95	+0	+28.2 Hz	.0363	1.0052	.0365
95	+95	+10.9 Hz	.0720	1.0052	.0724
96	-96	+76.9 Hz	.0005	1.0105	.0005
96	+0	+44.1 Hz	.0361	1.0105	.0365
96	+96	+11.3 Hz	.0716	1.0105	.0724

\*\*\*\*\*

TRANSITION : R 94 SPIN I= 3

COMPOSANTES DELTA M = +1

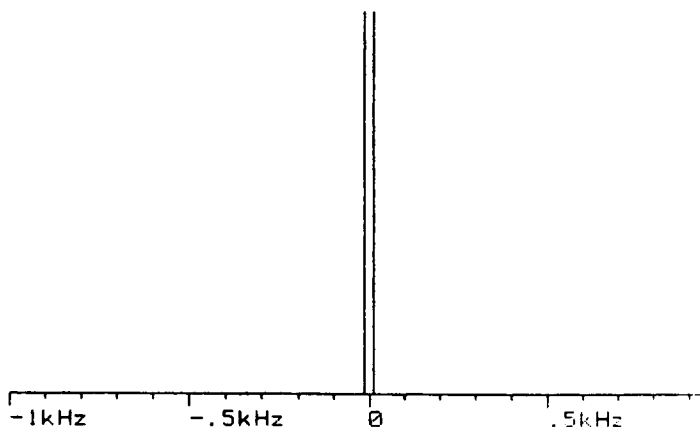
F	Mf	W(F,Mf)	I1	I2	I1*I2
91	-91	-90.8 Hz	.0006	.9838	.0006
91	+0	-40.0 Hz	.0371	.9838	.0365
91	+91	+10.7 Hz	.0735	.9838	.0723
92	-92	-54.4 Hz	.0006	.9891	.0006
92	+0	-22.0 Hz	.0369	.9891	.0365
92	+92	+10.4 Hz	.0731	.9891	.0723
93	-93	-19.4 Hz	.0005	.9944	.0005
93	+0	-4.6 Hz	.0367	.9944	.0365
93	+93	+10.2 Hz	.0727	.9944	.0723
94	-94	+14.4 Hz	.0005	.9997	.0005
94	+0	+12.3 Hz	.0365	.9997	.0365
94	+94	+10.2 Hz	.0724	.9997	.0723
95	-95	+47.0 Hz	.0005	1.0050	.0005
95	+0	+28.7 Hz	.0363	1.0050	.0365
95	+95	+10.4 Hz	.0720	1.0050	.0723
96	-96	+78.4 Hz	.0005	1.0104	.0005
96	+0	+44.6 Hz	.0361	1.0104	.0365
96	+96	+10.8 Hz	.0716	1.0104	.0724
97	-97	+108.7 Hz	.0005	1.0157	.0005
97	+0	+60.0 Hz	.0359	1.0157	.0365
97	+97	+11.3 Hz	.0712	1.0157	.0724

TRANSITION: R 94

SPIN = 0

COMPOSANTES F = 94

|DELTA M| = 1

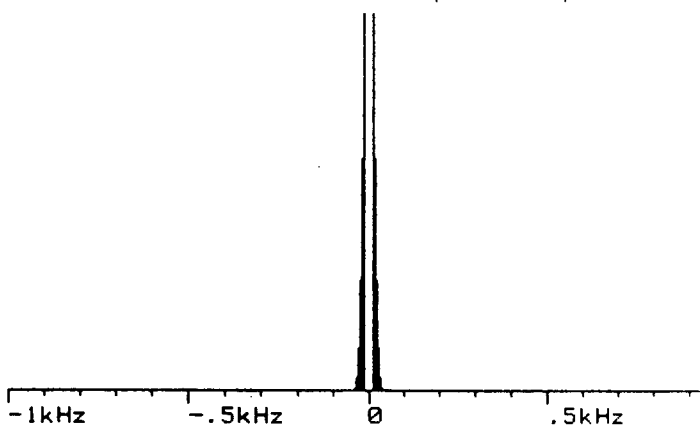


TRANSITION: R 94

SPIN = 1

COMPOSANTES F = 95

|DELTA M| = 1

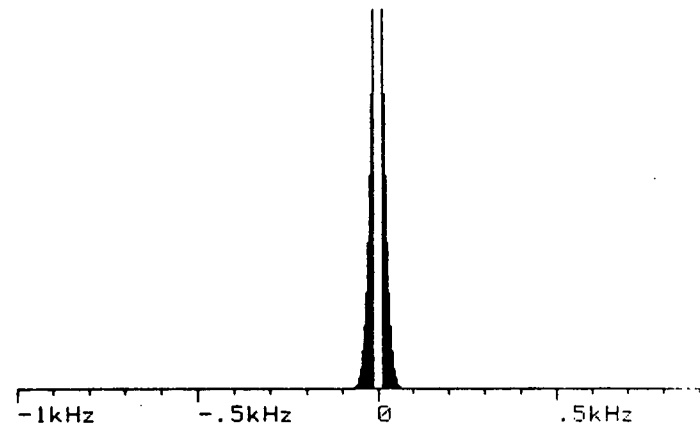


TRANSITION: R 94

SPIN = 2

COMPOSANTES F = 96

|DELTA M| = 1

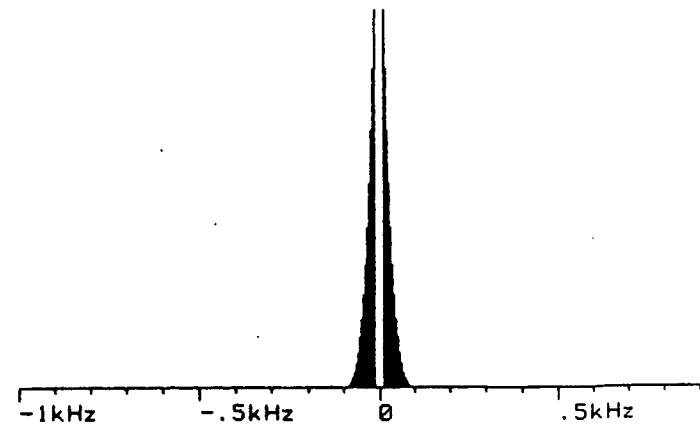


TRANSITION: R 94

SPIN = 3

COMPOSANTES F = 97

|DELTA M| = 1



## APPENDICE E

Cet Appendice contient le listing du programme de commande du spectromètre par le micro-ordinateur HP 9826.



```

1210 * Frqfin : FREQUENCE FINALE DU BALAYAGE
1220 * Fsyn0 : FREQUENCE INITIALE DU SYNTHETISEUR
1230 * Fsync : FREQUENCE CENTRALE DU SYNTHETISEUR
1240 * Fsyn1 : FREQUENCE INITIALE DU BALAYAGE
1250 * Gas$ : NOM DU GAZ A ETUDIER
1260 * Hm$ : HEURE,MINUTE,SECONDE DU JOUR J
1270 * I : INDICE DU PAS
1280 * K : INDICE DU BALAYAGE
1290 * Kk : NOMBRE D'ACCUMULATIONS RETENUES
1300 * Nacc : NOMBRE D'ACCUMULATIONS
1310 * Npara : PARAMETRE DU CHANGEMENT DE DONNEES.
1320 * Npas : NOMBRE DE PAS
1330 * P : PAS DES CANAUX A DEFILER
1340 * Pref : POSITION / REFERENCE
1350 * Pgen : POSITION / GENE.
1360 * Payn : PUISSANCE DU SYNTHETISEUR
1370 * Rr : Garder le balayage(oui/non)
1380 * Rut : RAPPORT D'UTILISATION SYNT/BATTEMENT
1390 * Tdel : RETARD DU VOLTMETRE(ms)
1400 * Tdell : RETARD DU VOLTMETRE(S)
1410 * Tt : BALAYAGES INDIVIDUELS OU NON
1420 * T1 : TEMPS DEBUT BALAYAGE
1430 * T2 : TEMPS FIN BALAYAGE
1440 * T3 : TEMPS D'I BALAYAGE
1450 * Ugen : UTILISATION DU GENE
1460 * Vr(30,1001) : DONNEES BRUTES
1470 * V(30,1001) : DONNEES ENTIERES
1480 * Vm(1001) : DONNEES MOYENNES
1490 * Kbali(30) : BALAYAGES RETENUS
1500 .....
1510 .....
1520 .....
1530 FORMAT ON THE BUS
1540 .....
1550 IMAGE "FR",DDDDD.DD,"KH"
1560 IMAGE "AM",DDD,"DB"
1570 IMAGE "D",DDD,"S"
1580 ! PROGRAMMABLE KEYS:
1590 !
1600 ON KEY 0 LABEL "DONNEES" GOSUB Inp
1610 ON KEY 1 LABEL "MODIF.." GOSUB Ninp
1620 ON KEY 2 LABEL "EN ROUTE" GOSUB Run
1630 ON KEY 3 LABEL "VUE 1a1" GOSUB View
1640 ON KEY 4 LABEL "CHOIX" GOSUB Choice
1650 ON KEY 5 LABEL "ACC.DON." GOSUB Accumdon
1660 ON KEY 6 LABEL "TRAC.MOY." GOSUB Tracmoymoy
1670 ON KEY 7 LABEL "STOCKAGE" GOSUB Stockdisc
1680 ON KEY 8 LABEL "PT.a PT." GOSUB Canal
1690 ON KEY 9 LABEL "LECTURE" GOSUB Lecture
1700 !
1710 ! WAIT FOR CHOICE
1720 !
1730 Spin:GOTO Spin
1740 !
1750 Inp: SUBROUTINE INPUT
1760 !
1770 GCLEAR
1780 PRINT CHR$(12);
1790 INPUT "UTILISATION DU GENE. ?","Ugen
1800 IF Ugen=0 THEN GOTO 1850;

```

```

2410 IF Pgen=0 THEN GOTO 2520
2420 IF Pgen=1 THEN GOTO 2450
2430 GOTO 2340
2440 !
2450 ! BATTEMENT > GENE.
2460 !
2470 Fsyn0=Fsync-Fint
2480 GOTO 2710
2490 !
2500 ! BATTEMENT < GENE.
2510 !
2520 Fsyn0=Fsync+Fint
2530 Fpas=Fpas
2540 GOTO 2710
2550 !
2560 !
2570 !
2580 !
2590 !
2600 !
2610 !
2620 !
2630 !
2640 !
2650 !
2660 !
2670 !
2680 !
2690 !
2700 Fsyn0=Fsync-Fint
2710 PRINT "L ENTREE DES DONNEES EST TERMINEE"
2720 !
2730 !
2740 !
2750 !
2760 !
2770 !
2780 !
2790 !
2800 !
2810 Ninp:
2820 !
2830 !
2840 !
2850 !
2860 !
2870 !
2880 !
2890 !
2900 !
2910 !
2920 !
2930 !
2940 !
2950 !
2960 !
2970 !
2980 !
2990 !
3000 !

3010 IF Cdon<>1 THEN GOTO 2990
3020 PRINT
3030 PRINT
3040 PRINT " POUR CHANGER : FAIRE:"
3050 PRINT
3060 PRINT "FREQUENCE DU GENE. (kHz) : 1"
3070 PRINT "PUISSANCE DU SYNT. (dBm) : 2"
3080 PRINT "FREQ.CENT.DU SYNT. (kHz) : 3"
3090 PRINT "PAS EN FREQUENCE (kHz) : 4"
3100 PRINT "NOMBRE DE PAS : 5"
3110 PRINT "NOMBRE D ACCUMULATIONS : 6"
3120 PRINT "RETARD DU VOLTMETRE (ms) : 7"
3130 PRINT "ECHELLE DU COMPTEUR (A OU C) : 8"
3140 PRINT "RESOLUTION DU COMPTEUR (Hz) : 9"
3150 PRINT "POSITION DES ASSERVISSEMENTS : 10"
3160 PRINT "NOM DU GAZ A ETUDIER : 11"
3170 INPUT Npara
3180 !
3190 SELECT Npara
3200 !
3210 CASE 1
3220 INPUT "FREQUENCE DU GENE. (kHz) ?",Fgen
3230 CASE 2
3240 INPUT "PUISSANCE DU SYNT. (dBm) ?",Psyn
3250 CASE 3
3260 INPUT "FREQ.CENT.DU SYNT. (kHz) ?",Fsync
3270 GOTO 3670
3280 PRINT
3290 CASE 4
3300 INPUT "PAS EN FREQUENCE (kHz) ?",Fpas
3310 GOTO 3670
3320 CASE 5
3330 INPUT "NOMBRE DE PAS : ?",Npas
3340 GOTO 3670
3350 CASE 6
3360 INPUT "NOMBRE D ACCUMULATIONS : ?",Nacc
3370 CASE 7
3380 INPUT "RETARD DU VOLTMETRE (ms) ?",Tdel
3390 CASE 8
3400 INPUT "ECHELLE DU COMPTEUR (FREQ.A OU C) ?",Fcs$
3410 CASE 9
3420 INPUT "RESOLUTION DU COMPTEUR (Hz) ?",Fcr
3430 CASE 10
3440 !
3450 ! COMMENTAIRES DANS Inp
3460 !
3470 INPUT "UTILISATION DU GENE. ?",Ugen
3480 IF Ugen=0 THEN Ugen$="NON"
3490 IF Ugen=1 THEN Ugen$="OUI"
3500 PRINT
3510 PRINT "UTILISATION DU GENE. : ",Ugen$
3520 INPUT "LASER AU DESSUS DE LA REFERENCE ?",Pref
3530 IF Pref=0 THEN Pref$="DESSOUS"
3540 IF Pref=1 THEN Pref$="DESSUS"
3550 PRINT
3560 PRINT "LASER AU ",Pref$,"DE LA REFERENCE"
3570 Fgen=0
3580 IF Ugen=0 THEN GOTO 3660
3590 INPUT "BATTEMENT LASER SUPERIEUR AU GENE. ?",Fgen
3600 IF Fgen=0 THEN Fgen$="INFERIEUR"

```



```

3610 IF Pgen=1 THEN Pgen$="SUPERIEUR"
3620 PRINT
3630 PRINT "BATTENT LASER",Pgen$,"AU GENE."
3640 Rut=1
3650 GOTO 3670
3660 INPUT "RAPPORT D'UTILISATION DU SYNTH. ?",Rut
3670 Fint=ABS(Fpas+Npas/2)
3680 Som=Ugen+Pref+Pgen
3690 IF Som=0 OR Som=2 THEN GOTO 3740
3700 IF Som<>1 AND Som<>3 THEN GOTO 3470
3710 Fsyn0=Faync-Fint
3720 Fpas=ABS(Fpas)
3730 GOTO 3810
3740 Fsyn0=Faync+Fint
3750 Fpas=-ABS(Fpas)
3760 CASE 11
3770 INPUT "NOM DU GAZ ?",Gas$
3780 CASE ELSE
3790 BEEP
3800 GOTO 3020
3810 END SELECT
3820
3830 INPUT "AUTRE CHANGEMENT ?",Aut
3840 IF Aut=1 THEN GOTO 3030
3850
3860
3870
3880 GOSUB Comsyndvm
3890 OUTPUT @Fsyn USING 1550;Fsyn0
3900
3910 PRINT "L'ENTREE DES DONNEES EST TERMINEE"
3920 RETURN
3930 Runt=1
3940
3950 GCLEAR
3960 PRINT CHR$(12);
3970 PRINT "MODE DE FONCTIONNEMENT: FAIRE:"
3980 PRINT
3990 PRINT
4000 PRINT "BALAYAGES EN RAFALE "
4010 PRINT "< RAPIDE MAIS INVISIBLE > ***** 0"
4020 PRINT
4030 PRINT "BALAYAGES INDIVIDUELS"
4040 PRINT "< CHOIX APRES BALAYAGE > ***** 1"
4050 PRINT
4060 PRINT "PASSAGE MODE IND. --> RAFALE ***** 2"
4070 PRINT
4080 PRINT "VISUALISATION PROGRESSIVE "
4090 PRINT "DE L'ACCUMULATION ***** 3"
4100 INPUT "QUEL EST VOTRE CHOIX ?",Tt
4110
4120 PRINT CHR$(12);
4130 GCLEAR
4140 IF Tt=3 THEN GOTO 4830
4150
4160 Q=0 : POUR ARRET EN CAS DANGER FAIRE Q=1
4170
4180 : INFORMATION TO THE SYNTHESIZER
4190 : AND DIGITAL VOLTMETER
4200
4210 GOSUB Comsyndvm
4220 OUTPUT @Fsyn USING 1550;Fsyn0
4230
4240
4250 FOR K=1 TO Nacc
4260 IF Q=1 THEN GOTO 5430
4270 PRINT
4280 PRINT "BALAYAGE #",K
4290
4300 : MESURE DE LA FREQUENCE
4310
4320 GOSUB Mesfreq
4330 Frqint=Fmes/1000
4340 IF Tt=1 THEN GOTO 4380
4350 PRINT USING 4360;"FREQUENCE INITIALE =",Frqint,"kHz"
4360 IMAGE 20A,DDDDDD.DDD,3A
4370
4380 Fsyn1=Fsyn0-Fpas
4390 T1=TIMEDATE
4400
4410 : BALAYAGE AVEC PRISE DE DONNEES
4420
4430 FOR I=1 TO Npas+1
4440 Ff=Fsyn1+Fpas*I
4450 OUTPUT @Fsyn USING 1550;Ff
4460 WAIT .001
4470 TRIGGER 724
4480 ENTER 724;Vr(K,I)
4490 NEXT I
4500 T2=TIMEDATE
4510 T3=T2-T1
4520
4530 GOSUB Mesfreq
4540 Frqfin=Fmes/1000
4550
4560 : RETOUR A LA FREQUENCE D ORIGINE"
4570
4580 OUTPUT @Fsyn USING 1550;Fsyn0
4590 WAIT .2
4600
4610 IF Tt=1 THEN GOTO 4670
4620 PRINT USING 4360;"FREQUENCE FINALE =",Frqfin,"kHz"
4630 PRINT "TEMPS DE BALAYAGE =",T3,"SEC"
4640
4650 IF Tt=0 THEN GOTO 4760
4660
4670 T3=T2-T1
4680 GOSUB Conv
4690 GOSUB Tracer
4700
4710 PRINT "POUR UN BALAYAGE EN RAFALE ENTRER: 2"
4720 INPUT "VOULEZ VOUS GARDER CE BALAYAGE ?",Rr
4730 IF Rr=0 THEN K=K-1
4740 IF Rr=2 THEN Tt=0
4750 IF Rr<>1 AND Rr<>0 AND Rr<>2 THEN GOTO 4720
4760
4770
4780 NEXT K
4790 GOTO 5340
4800

```

```

4810 ! VISUALISATION DE L'ACCUMULATION PAS à PAS
4820 !
4830 Q=0
4840 GINIT
4850 GRAPHICS ON
4860 GOSUB Consyndvm
4870 OUTPUT @Fsyn USING 1550;Fsyn0
4880 FOR I=1 TO Npas+1
4890 Vm(I)=0
4900 NEXT I
4910 FOR K=1 TO Nacc
4920 IF Q=1 THEN RETURN
4930 GCLEAR
4940 WINDOW 0,Npas,-1100*K,1200*K
4950 AXES Npas/10,0
4960 IF K=1 THEN GOTO 5040
4970 MOVE 5,1000*K
4980 LABEL USING 6990;"MOYENNE APRES ",K,"BALAYAGES DE DUREE";T3;"SEC"
4990 MOVE 5,1100*K
5000 LABEL USING 6270;"FR.INIT=";Frqint;"kHz";"FR.FIN=";Frqfin;"kHz"
5010 MOVE 5,-1100*K
5020 LABEL USING 6330;"BALAYAGE DE PAS",ABS(Fpas),"kHz SUR",ABS(Npas*Fpas),"kHz"
5030 !
5040 GOSUB Mesfreq
5050 Frqint=Fmes/1000
5060 Fsyni=Fsyn0-Fpas
5070 T1=TIMEDATE
5080 FOR I=1 TO Npas+1
5090 Ff=Fsyni+Fpas*1
5100 OUTPUT @Fsyn USING 1550;Ff
5110 TRIGGER 724
5120 ENTER 724;Vr(K,I)
5130 V(K,I)=Vr(K,I)*1000
5140 Va(I)=Vm(I)+V(K,I)
5150 MOVE I,Va(I)
5160 DRAW I,Va(I)
5170 NEXT I
5180 T2=TIMEDATE
5190 GOSUB Mesfreq
5200 Frqfin=Fmes/1000
5210 OUTPUT @Fsyn USING 1550;Fsyn0
5220 IF K>1 THEN GOTO 5320
5230 MOVE 5,1000*K
5240 LABEL USING 6990;"MOYENNE APRES ",K,"BALAYAGE DE DUREE";T3;"SEC"
5250 MOVE 5,1100*K
5260 LABEL USING 6270;"FR.INIT=";Frqint;"kHz";"FR.FIN=";Frqfin;"kHz"
5270 MOVE 5,-1100*K
5280 LABEL USING 6330;"BALAYAGE DE PAS",Fpas,"kHz SUR",Npas*Fpas,"kHz"
5290 INPUT "VOULEZ-VOUS GARDER CE BALAYAGE ?";Gb
5300 IF Gb=1 THEN GOTO 5320
5310 GOTO 4870
5320 NEXT K
5330 !
5340 T3=T2-T1
5350 FOR K=1 TO Nacc
5360 Kbal(K)=1
5370 GOSUB Conv
5380 NEXT K
5390 !
5400 PRINT
5410 PRINT
5420 PRINT "PRISE DE DONNEES TERMINEE"
5430 BEEP
5440 Heures=FNTimes$(TIMEDATE)
5450 Dates=Date$
5460 RETURN
5470 !
5480 View:
5490 ! VISUALISATION DES BALAYAGES
5500 !
5510 PRINT CHR$(12);
5520 FOR K=1 TO Nacc-1
5530 GCLEAR
5540 GOSUB Tracer
5550 INPUT "POUR LE SUIVANT FAIRE CONTINUE",Gw
5560 NEXT K
5570 K=Nacc
5580 GOSUB Tracer
5590 PRINT "TOUS LES BALAYAGES ONT ETE VUS"
5600 RETURN
5610 !
5620 Choice:
5630 ! CHOIX DES BALAYAGES
5640 !
5650 PRINT CHR$(12);
5660 GCLEAR
5670 INPUT "VOULEZ-VOUS UN CHOIX INDIVIDUEL?";Cind
5680 IF Cind=0 THEN GOTO 5760
5690 FOR K=1 TO Nacc
5700 GCLEAR
5710 GOSUB Tracer
5720 INPUT "VOULEZ-VOUS GARDER CE BALAYAGE";Kbal(K)
5730 NEXT K
5740 GOTO 5880
5750 INPUT "CHOIX PAR BLOC: ENTRER LES BORNES DU BLOC";Cinit,Cfin
5760 FOR K=Cinit TO Cfin
5770 Kbal(K)=1
5780 NEXT K
5790 IF Cinit=1 THEN GOTO 5840
5800 FOR K=1 TO Cinit-1
5810 Kbal(K)=0
5820 NEXT K
5830 IF Cfin=Accu THEN GOTO 5880
5840 FOR K=Cfin+1 TO Nacc
5850 Kbal(K)=0
5860 NEXT K
5870 PRINT "LE CHOIX EST TERMINE"
5880 RETURN
5890 Stockdisc:
5900 PRINT CHR$(12);
5910 GCLEAR
5920 PRINT "CHARGER DISC DONNEES"
5930 INPUT "NOM DU FICHIER",Fich$
5940 CREATE BOAT Fich$,270,8
5950 ASSIGN @F1 TO Fich$
5960 INPUT "VOS COMMENTAIRES SUR 1 LIGNE",Comm$
5970 OUTPUT @F1;Fich$
5980 OUTPUT @F1;Comm$
5990 !

```

```

6000 OUTPUT @P1;Fgen
6010 OUTPUT @P1;Fsyn
6020 OUTPUT @P1;Fsyn0
6030 OUTPUT @P1;Fpas
6040 OUTPUT @P1;Npas
6050 OUTPUT @P1;Nacc
6060 OUTPUT @P1;Tdel
6070 OUTPUT @P1;Fcs$
6080 OUTPUT @P1;Fcr
6090 OUTPUT @P1;T3
6100 OUTPUT @P1;Frqint
6110 OUTPUT @P1;Frqfin
6120 OUTPUT @P1;Kk
6130 OUTPUT @P1;Dates$
6140 OUTPUT @P1;Heures$
6150 OUTPUT @P1;Vm(*)
6160 ASSIGN @P1 TO *
6170 PRINT "STOCKAGE TERMINE"
6180 RETURN
6190 Tracer:
6200 Fp=ABS(Fpas)*Rut
6210 GINIT
6220 GRAPHICS ON
6230 WINDOW 0,Npas,-1200,1200
6240 AXES Npas/10,0
6250 MOVE 5,1100
6260 LABEL USING 6270;"FR.INIT=";Frqint;"kHz";"FR.FIN=";Frqfin;"kHz"
6270 IMAGE 8A,DDDDDD.DD,1X,3A,1X,7A,DDDDDD.DD,1X,3A
6280 MOVE 5,1000
6290 LABEL USING 6300;"BALAYAGE NO";K;"DE DUREE";T3;"SEC"
6300 IMAGE 11A,DDD,1X,8A,DDDD,1X,3A
6310 MOVE 5,-1200
6320 LABEL USING 6330;"BALAYAGE DE PAS";Fp,"kHz SUR",Npas*Fp,"kHz"
6330 IMAGE 15A,DDD,DD,1X,9A,DDDDDD.DD,1X,3A
6340 MOVE 0,V(K,1)
6350 .FOR I=1 TO Npas+1
6360 DRAW I-1,V(K,1)
6370 NEXT I
6380 RETURN
6390 Accumdon:
6400 !
6410 PRINT CHR$(12);
6420 GCLEAR
6430 PRINT
6440 PRINT
6450 PRINT
6460 PRINT
6470 PRINT "ACCUMULATION EN COURS"
6480 PRINT
6490 PRINT
6500 PRINT
6510 PRINT
6520 FOR I=1 TO Npas+1
6530 Kk=0
6540 Vm(I)=0
6550 FOR K=1 TO Nacc
6560 IF Kbal(K)=0 THEN GOTO 6590
6570 Kk=Kk+1
6580 Vm(I)=Vm(I)+V(K,1)
6590 NEXT K
6600 Vm(I)=Vm(I)/Kk
6610 NEXT I
6620 PRINT "ACCUMULATION TERMINEE"
6630 RETURN
6640 Tracmoy:
6650 PRINT CHR$(12);
6660 GCLEAR
6670 Fp=ABS(Fpas)*Rut
6680 Q=0
6690 !
6700 ! SENS DES FREQUENCES
6710 !
6720 !
6730 IF Fgen=0 THEN Sfrq$="---->"
6740 IF SGN(Fgen)=1 THEN Sfrq$="---->"
6750 IF SGN(Fgen)=-1 THEN Sfrq$="<----"
6760 !
6770 GINIT
6780 GRAPHICS ON
6790 INPUT "VOULEZ-VOUS SORTIR SUR TABLE TRACANTE",Vv
6800 IF Vv=1 THEN
6810 PLOTTER IS 705,"HPGL"
6820 INPUT "VOULEZ-VOUS SEULEMENT LA COURBE",Cc
6830 ELSE
6840 PLOTTER IS 3,"INTERNAL"
6850 END IF
6860 WINDOW 0,Npas,-1200,1200
6870 IF Cc=1 THEN GOTO 7100
6880 AXES Npas/10,0
6890 IF Q=1 THEN GOTO 7350
6900 MOVE 5,1100
6910 LABEL USING 6270;"FR.INIT=";Frqint;"kHz";"FR.FIN=";Frqfin;"kHz"
6920 IMAGE 8A,DDDDDD.DD,1X,3A,1X,7A,DDDDDD.DD,1X,3A
6930 IF Q=1 THEN GOTO 7350
6940 MOVE 5,1000
6950 IF Kk=1 THEN GOTO 6980
6960 LABEL USING 6990;"MOYENNE APRES ";Kk;"BALAYAGES DE DUREE";T3;"SEC"
6970 GOTO 7000
6980 LABEL USING 6990;"MOYENNE APRES ";Kk;"BALAYAGE DE DUREE";T3;"SEC"
6990 IMAGE 14A,DDD,DD,1X,18A,DDDD,1X,3A
7000 IF Q=1 THEN GOTO 7350
7010 MOVE 5,-1000
7020 LABEL USING 7030;"FREQ.",Sfrq$
7030 IMAGE 5A,K
7040 MOVE 5,-1100
7050 LABEL USING 6330;"BALAYAGE DE PAS";Fp,"kHz SUR",Npas*Fp,"kHz"
7060 IMAGE 15A,DDD,DD,1X,9A,DDDDDD.DD,1X,3A
7070 MOVE 5,-1200
7080 LABEL USING 7090;"NOM:";Gas$;Fich$,Dates$,Heures$
7090 IMAGE 5A,1X,4A,1X,10A,1X,9A,1X,8A
7100 MOVE 0,Vm(I)
7110 FOR I=1 TO Npas
7120 DRAW I-1,Vm(I)
7130 NEXT I
7140 !
7150 ! RESUME DE TOUS LES PARAMETRES
7160 !
7170 PRINT "NOM DU FICHIER: ",Fich$
7180 PRINT "DATE",Dates$,"HEURE",Heures$
7190 PRINT "COMMENTAIRES: "

```

```

7200 PRINT Com$
7210 PRINT
7220 IMAGE 24A,4X,DDDDDD.DDD,2X,3A
7230 PRINT USING 7220;"FREQUENCE DU GENE *****",Fgen,"kHz"
7240 PRINT "PUISSANCE DU SYNTHE ***",Psyn,"dB"
7250 PRINT USING 7220;"FREQ.CENT. DU SYNTHE ***",Fsync,"kHz"
7260 PRINT "PAS EN FREQUENCE *****",Fpas,"kHz"
7270 PRINT "NOMBRE DE PAS *****",Npas
7280 PRINT "NOMBRE D'ACCUMULATIONS **",Kk
7290 PRINT "RETARD DU VOLTMETRE *****",Tdel,"mS"
7300 PRINT "ECHELLE DU COMPTEUR *****",Fcs$
7310 PRINT "RESOLUTION DU COMPTEUR **",Fcr,"Hz"
7320 PRINT "TEMPS D'1 BALAYAGE *****",T3,"SEC"
7330 PRINT USING 7220;"FREQUENCE INITIALE *****",Froint,"kHz"
7340 PRINT USING 7220;"FREQUENCE FINALE *****",Frqfin,"kHz"
7350 RETURN
7360
7370 Mesfreq: SUBROUTINE MESURE DE LA FREQUENCE
7380 SEND 7;CMD "709"
7390 WAIT .2
7400 IF Fcs$="A" THEN Fcs$="F4"
7410 IF Fcs$="C" THEN Fcs$="F5"
7420 IF Fcr=1 THEN Fcr$="G6"
7430 IF Fcr=10 THEN Fcr$="G5"
7440 IF Fcr=100 THEN Fcr$="G4"
7450 IF Fcr=1000 THEN Fcr$="G3"
7460 OUTPUT @Fco;"P"&Fcs$&Fcr$&"T"
7470 ENTER 725;Fmes
7480 LOCAL 725
7490 RETURN
7500 Comsyndvm: COMMANDE DU SYNTHETISEUR
7510 ET DU VOLTMETRE DIGITAL
7520 OUTPUT @Fsyn;"RF1": SORTIE AVANT
7530
7540
7550
7560
7570
7580
7590
7600 OUTPUT @Fsyn;"FUIMD2"
7610 OUTPUT @Fsyn USING 1560;Psyn
7620 OUTPUT @Fsyn USING 1550;Fsyno
7630 OUTPUT @Dvm;"N1S,EBS,R2,T2,F1"
7640 Tdel1=Tdel/1000
7650 OUTPUT @Dvm USING 1570;Tdel1
7660 RETURN
7670 Conv:
7680
7690
7700
7710
7720
7730
7740
7750
7760
7770
7780
7790
7800 PRINT
7810 PRINT
7820 PRINT "ENTRER LE NOM DU GAZ DANS 'MODIF'"
7830 PRINT
7840 PRINT "APRES LA LECTURE DU FICHIER"
7850 INPUT "NOM DU FICHIER",Fich$
7860 ASSIGN @P2 TO Fich$
7870 ENTER @P2;Fich$
7880 ENTER @P2;Comm$
7890 ENTER @P2;Fgen
7900 ENTER @P2;Payn
7910 ENTER @P2;Fsyno
7920 ENTER @P2;Fpas
7930 ENTER @P2;Npas
7940 ENTER @P2;Nacc
7950 ENTER @P2;Tdel
7960 ENTER @P2;Fcs$
7970 ENTER @P2;Fcr
7980 ENTER @P2;T3
7990 ENTER @P2;Frqfin
8000 ENTER @P2;Frqfin
8010 ENTER @P2;Kk
8020 ENTER @P2;Dates$
8030 ENTER @P2;Heures$
8040 ENTER @P2;Vm(*)
8050 ASSIGN @P2 TO *
8060
8070
8080
8090
8100
8110
8120
8130 Canal:
8140 Q=0
8150 GINIT
8160 GRAPHICS ON
8170 WINDOW 0,Npas,-1000,1000
8180 MOVE 0,Vm(1)
8190 FOR I=1 TO Npas
8200 MOVE I-1,Vm(1)
8210 DRAW I-1,Vm(1)
8220 NEXT I
8230 MOVE 0,Vm(1)
8240 INPUT "ENTRER LE PAS (VARIABLE P)",P
8250 I=0
8260 I=I+P
8270 MOVE I-1,Vm(1)
8280 DRAW I-1,Vm(1)
8290 Can=I
8300 PAUSE
8310 IF Q=1 THEN GOTO 8330
8320 GOTO 8260
8330 PRINT "Vm(";Can-3;")=";Vm(Can-3)
8340 PRINT "Vm(";Can-2;")=";Vm(Can-2)
8350 PRINT "Vm(";Can-1;")=";Vm(Can-1)
8360 PRINT
8370 PRINT "Vm(";Can;")=";Vm(Can)
8380 PRINT "FREQ.=";Frqfin+Fpas*(Can-1)
8390 PRINT

```

```
8400 PRINT "Vm(";Can+1;")=";Vm(Can+1)
8410 PRINT "Vm(";Can+2;")=";Vm(Can+2)
8420 PRINT "Vm(";Can+3;")=";Vm(Can+3)
8430 RETURN
8440 END
8450 DEF FNTimes$(Now)
8460 Now=INT(Now) MOD 86400
8470 H=Now DIV 3600
8480 M=Now MOD 3600 DIV 60
8490 S=Now MOD 60
8500 OUTPUT T$ USING "#,ZZ,K"jH," ",M," ",S
8510 RETURN T$
8520 FNEND
8530 DEF FNTimes(T$)
8540 ON ERROR GOTO Err
8550 ENTER T$jH,M,S
8560 RETURN (3600*H+60*M+S) MOD 86400
8570 Err:OFF ERROR
8580 RETURN TIME DATE MOD 86400
8590 FNEND
```

## RÉFÉRENCES

- [ 1 ] W.E. LAMB, Jr., Theory of an optical maser.  
Phys. Rev., 134, n° 6 A, 1429-1450 (Juin 1964).
- [ 2 ] C. BORDE et L. HENRY, Stabilisation d'un laser à gaz carbonique et observation du phénomène de "Lamb dip" pour les transitions laser vers 10  $\mu$ m.  
C.R. Acad. Sc., Paris, 265, 1251-1254 (Novembre 1967).
- [ 3 ] P.H. LEE, M.L. SKOLNICK, Appl. Phys. Lett., 10 (11), 303 (1967).
- [ 4 ] R.L. BARGER and J.L. HALL, "Pressure shift and broadening of methane line at 3.39 microns studied by laser saturation molecular absorption", Phys. Rev. Lett., vol. 22, pp.4-8, (1969).
- [ 5 ] R.G. BREWER, M.J. KELLEY, and A. JAVAN, "Precision infrared Stark spectra of N<sup>14</sup>H<sub>2</sub>D using Lamb dip", Phys. Rev. Lett. vol. 23, pp. 559-563, (1969).
- [ 6 ] C. BORDE, Spectroscopie d'absorption saturée de diverses molécules au moyen des lasers à gaz carbonique et à protoxyde d'azote.  
C.R. Acad. Sc. Paris, 271, 371-374 (Août 1970).
- [ 7 ] L. DUNOYER, Comptes Rendus Acad. Sc. Paris, 152, 594 (1911).
- [ 8 ] O. STERN, Zeits. f. Physik, 39, 751 (1926).
- [ 9 ] N.F. RAMSEY, Molecular Beams, Oxford University Press (1956);  
A. KANTROWITZ and J. GREY, Rev. Sci. Inst., 22, 328 (1951).
- [ 10 ] V.S. LETHOKOV and V.G. MINOGIN, Journal de Physique Coll. C8, supplément au n° 12, Tome 42, (Décembre 1981).
- [ 11 ] J.V. PRODAN, W.D. PHILLIPS and H. METCALF, Phys. Rev. Lett. 49, 1149 (1982).  
J.V. PRODAN et W.D. PHILLIPS, JOSA B 1, n° 3, 504 (1984).
- [ 12 ] C. COHEN-TANNOUDJI, Cours au Collège de France (1982-1983 et 1983-1984).  
J. DALIBARD, S. REYNAUD, and C. COHEN-TANNOUDJI, Optics comm., 47, 6, 395 (1983).  
A. ASHKIN and J.P. GORDON, Optics Lett. 8, 511 (1983).

- [ 13 ] H. DEHMELT, Bull. Am. Phys. Soc. 7, 470 (1962).  
D. WINELAND, P. EKSTROM et H. DEHMELT, Phys. Rev. Lett. 31,  
1279 (1973).
- [ 14 ] W. NEUHAUSER, M. HOHENSTATT, P. TOSCHEK et H. DEHMELT,  
Phys. Rev. Lett. 41, 233 (1978).
- [ 15 ] D.J. WINELAND, et W.M. ITANO, Physics Letters 82 A, 75 (1981).
- [ 16 ] N.F. RAMSEY, Physical Review, vol 78, p. 695 (1950).
- [ 17 ] Y.V. BAKLANOV, B.Y. DUBETSKI et V.P. CHEBOTAEV, Appl. Phys., vol. 9,  
p. 171 (1976).
- [ 18 ] Y.V. BAKLANOV, V.P. CHEBOTAEV et B.Y. DUBETSKI, Appl. Phys., vol. 11,  
p. 201 (1976).
- [ 19 ] J.C. BERGQUIST, Ph. D. Thesis, University of Colorado (1978).
- [ 20 ] J.C. BERGQUIST, S.A. LEE et J.L. HALL, Phys. Rev. Lett., vol. 38,  
p. 159 (1977).
- [ 21 ] R.L. BARGER, J.C. BERGQUIST, T.C. ENGLISH et D.J. GLAZE,  
Appl. Phys. Lett., vol. 34, p. 850 (1979)
- [ 22 ] R.L. BARGER, Opt. Lett., vol. 6, p. 145 (1981).
- [ 23 ] J.C. BERGQUIST, S.A. LEE et J.L. HALL, in Laser Spectroscopy III,  
Springer-Verlag, New York, p. 142, 1977.
- [ 24 ] J.C. BERGQUIST, R.L. BARGER et D.J. GLAZE, in Laser Spectroscopy IV,  
Springer-Verlag, New York, p. 120, 1979.
- [ 25 ] Ch. J. BORDE, S. AVRILLIER, A. VAN LERBERGHE, Ch. SALOMON, D. BASSI  
et G. SCOLES, J. Phys. (Paris), vol. 42, supplément au n° 12,  
p. C8-15 (1981).
- [ 26 ] Ch.J. BORDE, S. AVRILLIER, A. VAN LERBERGHE, Ch. SALOMON, Ch. BREANT,  
D. BASSI et G. SCOLES, Appl. Phys., vol. B28, p. 82 (1982).
- [ 27 ] Ch.J. BORDE, Ch. SALOMON, S. AVRILLIER, A. VAN LERBERGHE, Ch. BREANT,  
D. BASSI et G. SCOLES, Phys. Rev. A30, (4) (Octobre 1984).
- [ 28 ] Ch. SALOMON, A. VAN LERBERGHE, S. AVRILLIER et Ch.J. BORDE, à paraître.

- [29] Ch. SALOMON, Thèse de 3ème Cycle, Université de Paris-Sud (1979).
- [30] Ch. SALOMON, Ch. BREANT, Ch.J. BORDE<sup>1</sup> et R.L. BARGER,  
J. Phys. (Paris), vol. 42, supplément au n° 12, p. C8-3 (1981).
- [31] Ch. SALOMON, Ch. BREANT, A. VAN LERBERGHE, G. CAMY et Ch.J. BORDE<sup>1</sup>,  
Appl. Phys. B, vol. 29, p. 153 (1982).
- [32] Ch. BREANT, Ch. SALOMON, G. CAMY, A. VAN LERBERGHE et Ch.J. BORDE<sup>1</sup>,  
à paraître.
- [33] J. BORDE<sup>1</sup>, Ch.J. BORDE<sup>1</sup>, Ch. SALOMON, A. VAN LERBERGHE, M. OUHAYOUN  
et C.D. CANTRELL, Phys. Rev. Letters, vol. 45, p. 14 (1980).
- Ⓚ [34] J. BORDE<sup>1</sup> et Ch.J. BORDE<sup>1</sup>, Chem. Phys., vol. 71, p. 417 (1982).
- [35] J. BORDE<sup>1</sup>, Ch. BREANT, Ch. SALOMON, A. VAN LERBERGHE, Ch.J. BORDE<sup>1</sup>,  
Huitième Conférence sur la Spectroscopie Moléculaire à Haute Résolu-  
tion (Tours 1983).
- [36] A. CLAIRON, A. VAN LERBERGHE, Ch. SALOMON, M. OUHAYOUN et Ch.J. BORDE<sup>1</sup>,  
Opt. Commun., vol. 35, p. 368 (1980).
- [37] A. CLAIRON, A. VAN LERBERGHE, Ch. BREANT, Ch. SALOMON, G. CAMY et  
Ch.J. BORDE<sup>1</sup>, J. Phys. (Paris), vol. 42, supplément au n° 12,  
p. C8-127 (1981).
- [38] Ch. SALOMON, S. AVRILLIER, A. VAN LERBERGHE, et Ch.J. BORDE<sup>1</sup>, in Laser  
Spectroscopy VI, H.P. Weber and W. Lüthy, ed., Springer-Verlag,  
p. 159 (1983).
- [39] Ch.J. BORDE<sup>1</sup>, C.R. Acad. Sc., Paris, vol. 282B, 341 (1976).
- [40] Ch.J. BORDE<sup>1</sup>, J.L. HALL, C.V. KUNASZ et D.G. HUMMER,  
Phys. Rev. vol. 14, p. 236 (1976).
- [41] Ch.J. BORDE<sup>1</sup>, Density matrix equations and diagrams for high resolution  
non-linear laser spectroscopy. Application to Ramsey fringes in the  
optical domain, dans Advances in Laser Spectroscopy, NATO ASI Series,  
édité par T. ARRECHI, F. STRUMIA et H. WALTHER, Plenum Press (1982).
- [42] Ch.J. BORDE<sup>1</sup>, in Laser Spectroscopy III, Springer-Verlag, New York, 1977  
p. 121, et C.R. Acad. Sc. Paris, vol. 284B, p. 101 (1977).



- [43] Ch.J. BORDE, Rev. Cethedec-Ondes NS 83-1, 1 (1983).
- [44] L.L. LEWIS, F.L. WALLS, and D.J. GLAZE,  
Journal de Physique, Coll. C8, supplément au n° 12, 42 (Décembre 1981).
- [45] G. KRAMER, J. Opt. Soc. Amer., vol. 68, p. 1634 (1978).
- [46] G. GRYNBERG, F. BIRABEN, E. GIACOBINO et B. CAGNAC,  
J. Physique, 38, 629 (1977).
- [47] S.A. LEE, J. HELMCKE, and J.L. HALL, in Laser Spectroscopy IV, ed.  
by H. WALTHER et K.W. ROTHE, Springer-Verlag, 1979, p. 130.
- [48] Ch.J. BORDE, C.R. Acad. Sc. Paris, 283 B, 181 (1976).
- [49] J.P. BARRAT et C. COHEN-TANNOUDJI, J. Phys. Rad. 22, 329 et 443 (1961).  
C. COHEN-TANNOUDJI, Ann. Phys. Paris, 7, 423, 469 (1962).  
C. COHEN-TANNOUDJI, Cargèse lectures in Physics, ed. by M. Levy,  
vol. 2, Gordon and Breach, New York, p. 347, 1968.
- [50] M. SARGENT, M.O. SCULLY, and W.E. LAMB,  
Laser Physics, Addison-Wesley, Reading, Mass., 1974.
- [51] Ch.J. BORDE, in Quantum Optics and Gravitation, North Atlantic Treaty  
Organization ASI Series (Plenum Press New York, 1983), and references  
therein, especially, N.S. Shiren, Appl. Phys. Lett., 33, 299 (1978);  
A. YARIV and J. AUYEUNG, IEEE J. Quantum Electron. QE-15, 224 (1979).
- [52] T.W. MOSSBERG, R. KACHRU, S.R. HARTMANN, and A.M. FLUSBERG,  
Phys. Rev. A 20, 1976 (1979); T.W. MOSSBERG and S.R. HARTMANN, Phys.  
Rev. A 23, 1271 (1981).
- [53] N. HATA and K. SHIMODA, Appl. Phys., 22, 1 (1980);  
M. BABA and K. SHIMODA, Appl. Phys., 24, 11 (1981).
- [54] ABELLA, N.A. KURNIT, S.R. HARTMANN, Phys. Rev., 141, 391 (1966).
- [55] N.S. SHIREN, Appl. Phys. Lett. 33, n° 4 (15 August 1978).
- [56] J.L. LE GOUET and P.R. BERMAN, Phys. Rev. A 20, 1105 (1979).
- [57] Ch. TANGUY, Communication personnelle.
- [58] B.J. FELDMAN and M.S.FELD, Phys. Rev. A 1, 1375 (1970).

- [59] K. UEHARA and K. SHIMODA, Jpn. J. Appl. Phys., 10, 623 (1971).
- [60] N.W. CARLSON, A.G. YODH, and T.W. MOSSBERG, Phys. Rev. Lett., 51, 35 (1983).
- [61] Ch.J. BORDE, M. OUHAYOUN, A. VAN LERBERGHE, Ch. SALOMON, S. AVRILLIER, C.D. CANTRELL et J. BORDE, in Laser Spectroscopy IV, H. WALTHER et K.W. ROTHE, éd. Springer-Verlag, p. 142, 1979.
- [62] A. VAN LERBERGHE, S. AVRILLIER et Ch.J. BORDE, I.E.E.E.J. Quantum Electron., vol. QE 14, p. 481 (1978).
- [63] J. HELMCKE, D. ZEYGOLIS, B.U. YEN, Appl. Phys., B 28, 83 (1982).
- [64] J.L. HALL and Ch.J. BORDE, Appl. Phys. Lett., 29, 788 (1976).
- [65] J.J. DEGNAN, H.E. WALKER, J.H. McELROY and N. McAVOY, I.E.E.E. J. of Quant. Electron., 489 (April 1973).
- [66] E.N. BAZAROV, G.A. GERASIMOV and A.I. SAZONOV, Sov. J. of Quant. Electron., 9 (3), 345 (1979).
- [67] C. FREED and A. JAVAN, Appl. Phys. Lett., 29, 788 (1976).
- [68] Ch.J. BORDE, S. AVRILLIER, M. GORLICKI, J. de Physique, 38, L.249 (1977).
- [69] A. CLAIRON, Communication personnelle.
- [70] G. CAMY, Bulletin B.N.M. n° 54, Octobre 1983.
- [71] R.W.P. DREVER, J.L. HALL, F.V. KOWALSKI, J. HOUGH, G.M. FORD, A.J. MUNLEY, et H. WARD, Appl. Phys., B 31, 97 (1983).  
J.L. HALL, L. HOLLBERG, T. BAER and H.G. ROBINSON, Appl. Phys. Lett., 39, 680 (1981); and in LASER SPECTROSCOPY V, eds. A.R.W. Mc KELLAR, T. OKA and B.P. STOICHEFF, Springer-Verlag, p. 178, 1981.
- [72] G.C. BJORKLUND, Opt. Lett., 5, 15 (1980).
- [73] R. RAJ, D. BLOCH, J.J. SNYDER, G. CAMY, et M. DUCLOY, Phys. Rev. Lett., 44, n° 19, 1251 (1980).
- [74] Ch.J. BORDE, VI<sup>th</sup> Int. Quant. Electronics Conf. Kyoto, Post dead Line Paper, 22.7P (1970).
- [75] G. CAMY, Thèse de Docteur-Ingénieur, Université Paris VI (1979). et références.

- [ 76 ] A. BRILLET, Thèse d'Etat, Université Paris-Sud (1976).
- [ 77 ] J.L. HALL, L. HOLLBERG, MA LONG-SHEN, T. BAER, and H.G. ROBINSON, Journal de Physique, Coll. C8, supplément au n° 12, 42 (Déc. 1981).
- [ 78 ] Ch.J. BORDE, Thèse d'Etat, Université Paris VI (1972).
- [ 79 ] R.L. BARGER, M.S. SOREM, and J.L. HALL, Appl. Phys. Lett., 22, 573 (1973).
- [ 80 ] R.F. LACEY, A.L. HELGESSON, J.H. HOLLOWAY, Proc. I.E.E.E., 54, 170 (1966).
- [ 81 ] D. BLOCH, R.K. RAJ, et M. DUCLOY, Opt. Commun. 37, 183 (1981).
- [ 82 ] Riant (SAT), Communication personnelle.
- [ 83 ] J.B. COLE, J. Phys. D : Appl. Phys., 8 (1975),  
Ch.J. BORDE et J.L. HALL (1973), non publié.
- [ 84 ] S. CHU, A. MILLS, Jr., J.L. HALL, in Laser Spectroscopy VI, ed. by H.P. WEBER and W. LÜTHY, Springer-Verlag (1983).
- [ 85 ] C. COHEN-TANNOUDJI, Cours au Collège de France (1982-1983 et 1983-1984).
- [ 86 ] M.M. SALOUR and C. COHEN-TANNOUDJI, Phys. Rev. Lett., 38, 757 (1977).
- [ 87 ] M.M. SALOUR, in Laser Spectroscopy III, ed. J.L. HALL and CARLSTEN, Springer-Verlag (1977).
- [ 88 ] G. CAMY, Thèse d'Etat, Université Paris XIII (1984).
- [ 89 ] L. HOLLBERG and J.L. HALL, in Laser Spectroscopy VI, ed. by H.P. WEBER and W. LÜTHY, Springer-Verlag, p. 229 (1983).
- [ 90 ] S.N. BAGAYEV, V.P. CHEBOTAYEV, A.S. DYCHKOV and S.V. MALTSEV, Journal de Physique, Coll. C8, supplément au n° 12, 42, p. C8-21 (Déc. 1981).
- [ 91 ] M. OUHAYOUN, Thèse d'Etat, Université Paris XIII (1979).
- [ 92 ] Ch. FREED, L.C. BRADLEY et R.G. O'DONNELL, I.E.E.E. J. of Quantum Electronics, vol. QE-16, p. 1195-1206 (1980).

- [ 93 ] R.B. GIBSON, K. BOYER, and A. JAVAN, I.E.E.E. J. of Quantum Electronics, QE-15, 1224 (Nov. 1979).
- [ 94 ] T.J. BRIDGES, E.G. BURCKHARDT and P.W. SMITH, Appl. Phys. Lett., 20, 403 (1972).
- [ 95 ] S. AVRILLIER, Thèse d'Etat, Université Paris XIII(1978).
- [ 96 ] Ch. FREED and A. JAVAN, Appl. Phys. Lett.,17, 53 (1970).
- [ 97 ] V.M. GUSEV, O.N. KOMPANETS et al., Sov. J. Quant. Electron., 4, 1370 (1975).
- [ 98 ] Ch.J. BORDE and J.L. HALL, in Laser Spectroscopy, ed. by R.G. BREWER and A. MOORADIAN, Plenum Press p. 125 (1973).  
J.L. HALL and Ch.J. BORDE, Bull. Am. Phys. Soc., 19, 1196 (1974).
- [ 99 ] J.L. HALL, Ch.J. BORDE, and K. UEHARA, Phys. Rev. Lett., 37 1339 (1976).
- [ 100 ] B. DAHMANI, Thèse de 3ème Cycle, Université Paris VI (1981).
- [ 101 ] A. FILIMON, Thèse de Docteur-Ingénieur, Université Paris VI (1983).
- [ 102 ] S.N. BAGAYEV, L.S. VASILENKO, V.G. GOLDORT, A.K. DMITRIYEV, A.S. DYCHKOV, and V.P. CHEBOTAYEV, Appl. Phys., 13, 291 (1977).
- [ 103 ] Ch.J. BORDE, C.R. Acad. Sc. Paris, 284 (6), Série B-101 (1977).
- [ 104 ] E.V. BAKLANOV, B. Ya. DUBETSKII, and V.M. SEMIBALAMUT, Sov. Phys., JETP, 49 (2), 244 (1979).
- [ 105 ] B.Ya. DUBETSKII, Sov. J. Quant. Electron., 6, 682 (1976).
- [ 106 ] B.Ya. DUBETSKII, and V.M. SEMIBALAMUT, Sov. J. Quant. Electron., 8, 103 (1978).
- [ 107 ] R.L. BARGER, Appl. Opt., 19, 2088 (1980).
- [ 108 ] K. FOX et N. PERSON, J. Chem. Phys., 64 (12), 5218 (1976).
- [ 109 ] E. PASCAUD, J. Physique, 37, 1287 (1976).
- [ 110 ] J. BORDE et Ch.J. BORDE, J. Mol. Spectrosc., 78, 353 (1979).

- [ 111] A.R. EDMONDS, ANGULAR MOMENTUM, Princeton University Press, Princeton, New Jersey (1960).
- [ 112] K. KIM, R.S. Mc DOWELL, and W.T. KING, J. Chem. Phys., 73 (1), 36 (1980).
- [ 113] Ch. SALOMON, Ch. CHARDONNET, A. VAN LERBERGHE, Ch. BREANT et Ch.J. BORDE, soumis au Journal de Physique-Lettres (1984).
- [ 114] Ch. TOWNES and A.L. SCHAWLOW, Microwave Spectroscopy, Mac-Graw Hill (1955).
- [ 115] G. HERZBERG, Molecular spectra and molecular structure.II. Infrared and Raman spectra of polyatomic molecules, Van Nostrand, p. 506-508 (1945).
- [ 116] K. FOX, J.Q.S.R.T., vol. 10, p. 1335-1342 (1970).
- [ 117] Ch.J. BORDE, J. SHARMA, Ph. TOURRENC, T. DAMOUR, Annales de Phys., à paraître.
- [ 118] Ch.J. BORDE, Notes non publiées, Effet Zeeman sur le méthane (1973).
- [ 119] T.W. HÄNSCH, and B. COUILLAUD, Opt. Commun., 35, 441 (1980).  
C. WIEMAN and T.W. HÄNSCH, Phys. Rev. Lett., 34, 1120 (1976).
- [ 120] R.V. POUND, Rev. Sci.Instr., 17, 490 (1946).
- [ 121] P.K. CHEO, I.E.E.E., J. of Quantum Electronics, QE-20, (7), 700 (1984).
- [ 122] W. LENTH, Opt. Lett., 8 (11), 575 (1983).
- [ 123] G. CAMY, Ch.J. BORDE, and M. DUCLOY, Opt. Commun., 41, 325 (1982).
- [ 124] G. KRAMER, D.N. GOSH ROY, J. HELMCKE, and F. SPIEWEK, Appl. Phys. Lett., 37, 4 (1980).
- [ 125] B. COUILLAUD, A. DUCASSE, L. SARGER, and D. BOSCHER, Appl. Phys. Lett., 36, 407 (1980).
- [ 126] A.I. FERGUSON, J.N. ECKSTEIN, and T.W. HÄNSCH, Appl. Phys., 18, 257 (1979).
- [ 127] G. CAMY, R. AMER, et N. COURTIER, Revue Phys. Appl., 19, 635 (1984).

- [128] H. BRUNET et M. PEREZ, J. Mol. Spectrosc., vol. 29, p. 472 (1969).
- [129] R.S. McDOWELL, H.W. GALBRAITH, B.J. KROHN, C.D. CANTRELL et E.D. HINKLEY, Opt. Commun., vol. 17, p. 178 (1976).
- [130] R.S. McDOWELL, H.W. GALBRAITH, C.D. CANTRELL, N.G. NERESON et E.D. HINKLEY, J. Mol. Spectrosc., vol. 68, p. 288 (1977).
- [131] J. MORET-BAILLY, Cahiers Phys., 15, 237 (1961).
- [132] K.T. HECHT, J. Mol. Spectrosc., 5, 355 (1960).
- [133] F. MICHELOT, Thèse d'Etat, Université de Dijon (1980).
- [134] J.C. HILICO, H. BERGER, et M. LOETE, Can. J. of Phys., 54, 1702 (1976).
- [135] F. MICHELOT, B. BOBIN, J. MORET-BAILLY, J. Mol. Spectrosc., 76, 374 (1979).  
Voir également : F. MICHELOT, Mol. Phys., 45(5), p. 949 et 971 (1982).  
F. MICHELOT, J. Mol. Spectros., 106, p.77 (1984).  
F. MICHELOT, Can. J. of Phys., 62, p. 148 (1984).
- [136] M. LOETE, Can. J. of Phys., 61, 1242 (1983).
- [137] A. ROBIETTE, D.L. GRAY, and F.W. BIRSS, Mol. Phys., 32, 1591 ( 1976).
- [138] B.J. KROHN, Los Alamos Scientific Laboratory Report, LA-6554 MS (1976).
- [139] W.G. HARTER and C.W. PATTERSON, J. Chem. Phys., 66, 4872, 4886 (1977).
- [140] W.G. HARTER, Phys. Rev. A-24, 192 (1981) (et références).
- [141] W.G. HARTER, C.W. PATTERSON, and F.J. DA PAIXAO, Rev. Mod. Phys., 50, 37 (1978).
- [142] W.G. HARTER and C.W. PATTERSON, Phys. Rev. A-19, 2277 (1979).
- [143] B. BOBIN, communication personnelle.
- [144] Ch. BREANT, Thèse d'Etat, Université Paris XIII (1984).
- [145] J. BORDE and Ch.J. BORDE, Chem. Phys., 84, 159 (1984).
- [146] J. BORDE, J. de Physique Lettres, 39, L-175 (1978);  
C.D. CANTRELL and H.W. GALBRAITH, J. Mol. Spectrosc., 58, 158 (1975).

- [147] Ch.J. BORDE<sup>1</sup>, J. BORDE<sup>1</sup>, Ch. BREANT, Ch. SALOMON, and A. VAN LERBERGHE, à paraître.
- [148] Ju.S. DOMNIN, N.B. KOSHELJAEVSKY, V.M. TATARENKOV, et P.S. SHUMJATSKY, J.E.T.P. Letters, vol. 30, p. 273 (1979); vol. 30, p. 269 (1979).
- [149] A. CLAIRON, B. DAHMANI, A. FILIMON, et J. RUTMAN, Conf. on Precision Electromagnetic Measurement, Delft (Août 1984), et à paraître dans J. of Quantum Electronics.
- [150] R. CAMPARGUE, J. Chem. Phys., 52, 1775 (1970).  
R. CAMPARGUE et J.P. BRETON, Entropie, 42, 18 (1971).
- [151] T.E. GOUGH, R.E. MILLER, et G. SCOLES, Appl. Phys. Lett. vol. 30, p. 338 (1977).
- [152] D. BASSI, Communication personnelle.
- [153] S. AVRILLIER, J.M. RAIMOND, Ch.J. BORDE<sup>1</sup>, D. BASSI, et G. SCOLES, Opt. Commun., vol. 39, p. 311 (1981).
- [154] Ph. LOISON, Thèse de Docteur-Ingénieur, Université Paris XIII (1984).
- [155] A. ABRAGAM, Principles of Nuclear Magnetism, Oxford University Press, New York (1961).
- [156] Ch.J. BORDE<sup>1</sup> et D. MAYOU, à paraître.
- [157] F. HERLEMONT, M. LYSZYK, and J. LEMAIRE, J. Mol. Spectrosc., 77, 69 (1979).
- [158] J.S. WELLS, F.R. PETERSEN, and A.G. MAKI, Appl. Opt., 18 (21), 3567 (1979).
- [159] G. MAGERL, J.M. FRYE, W.A. KREINER, and T. OKA, Appl. Phys. Lett., 42 (8), 656 (1983).  
G. MAGERL, W. SCHUPITA, E. BONEK, and W.A. KREINER, J. Mol. Spectrosc., 83, 431 (1980).
- [160] J.J. SNYDER, J. HELMCKE, and D. ZEYGOLIS, Appl. Phys., B-32, 25 (1983).

- [161] J.J. SNYDER, J. HELMCKE, M. GLÄSER, and D. ZEYGOLIS, in Laser Spectroscopy VI, ed. by H.P. WEBER and W. LÜTHY, Springer-Verlag, 108 (1983).
- [162] J. MORET-BAILLY, Cahiers Phys., 13, 476 (1959).
- [163] YOST, STEFFENS, and GROSS, J. Chem. Phys., 2, 311 (1934).
- [164] E.D. HINKLEY, Appl. Phys. Lett., 16, 351 (1970).
- [165] J.P. ALDRIGE, H. FILIP, H. FLICKER, R.F. HOLLAND, R.S. Mc DOWELL, N.G. NERESON, and K. FOX, J. Mol. Spectrosc., 58, 158 (1975).
- [166] H. BERGER, J. de Phys., 38, 1371 (1977).
- [167] F. MICHELOT, J. MORET-BAILLY, and K. FOX, J. Chem. Phys., 60, 2610 (1974).
- [168] M. LOETE, A. CLAIRON, A. FRICHET, R.S. Mc DOWELL, H.W. GALBRAITH, J.C. HILICO, J. MORET-BAILLY, et L. HENRY, C.R. Acad. Sci. Paris, 285, 175 (1977).
- [169] A.J. DORNEY, and J.K.G. WATSON, J. Mol. Spectrosc., 42, 135 (1972).
- [170] J.T. HOUGEN, and T. OKA, J. Chem. Phys., 74, 1830 (1981).
- [171] M.L. PALMA, and J. BORDE, J. Physique, 42, 1239 (1981).
- [172] G. PIERRE, A. VALENTIN, et L. HENRY, Can. J. of Phys., 62, (3), p. 254 (1984).
- [173] M.A. BOUCHIAT, J. GUENA, L. HUNTER, and L. POTTIER, Phys. Lett. B-117, 358 (1982) et B-134, 463 (1984).
- [174] B. Ya ZEL'DOVICH et coll. J.E.T.P. Lett., 25, 94 (1977); O. KOMPANETS et coll., Opt. Commun., 19, 414 (1976).
- [175] Ch. CHARDONNET et coll., communication personnelle et à paraître.



- [176] R.S. Mc DOWELL, L.J. RADZIEMSKI, H. FLICKER, H.W. GALBRAITH, R.C. KENNEDY, N.G. NERESON, B.J. KROHN, J.P. ALDRIGE, J.D. KING, et K. FOX, J. Chem. Phys., 69, p. 1513 (1978).
- [177] K. FOX, Opt. Commun., 19, p. 397 (1976).
- [178] J. RUTMAN, Proc. I.E.E.E., 66, 1048 (1978).
- [179] E. WIGNER, Phys. Rev., 40, 749 (1932).
- [180] J.H. SHIRLEY, J. Phys. B 13, 1537 (1980).  
J.H. SHIRLEY and S. STENHOLM, J. Phys. A 10, 613 (1977).
- [181] B. MACKE, Opt. Commun., 28, p. 131 (1979).
- [182] F. ROHART et B. MACKE, J. Phys., 41, 837 (1980).
- [183] E. ARIMONDO, P. GLORIEUX and T. OKA, Opt. Commun., 23, 369 (1977).
- [184] F.M. GARDNER, "Phase Lock Techniques", John WILEY Ed., New York, 1966.
- [185] H.S. ZIVI, A. BAUDER et Hs.H. GÜNTARD, Chem. Phys. Lett., 83, 469 (1981).